N° D'ORDRE : 585

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

Alain MARENCO

Ingénieur E.N.S.C.T.

UTILISATION DES ELEMENTS RADIOACTIFS ^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Po ET ^{210}Pb POUR L'ETUDE DU COMPORTEMENT DE LA MATIERE A L'ETAT PARTICULAIRE DANS LA TROPOSPHERE

Soutenue le 21 Février 1974 devant la Commission d' Examen

MM. D. BLANC — Président

D. VOIGT
G. LAMBERT
D.H. PEIRSON
J. FONTAN — Examinateurs

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546624_0014

N° D'ORDRE : 585

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE PAUL SABATIER DE TOULOUSE

pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR ES-SCIENCES PHYSIQUES

par

Alain MARENCO

Ingénieur E.N.S.C.T.

UTILISATION DES ELEMENTS RADIOACTIFS ^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Po ET ^{210}Pb POUR L'ETUDE DU COMPORTEMENT DE LA MATIERE A L'ETAT PARTICULAIRE DANS LA TROPOSPHERE

Soutenue le 21 Février 1974 devant la Commission d'Examen

MM.	D. BLANC	Président
	D. VOIGT	Examinateurs
	G. LAMBERT	
	D.H. PEIRSON	
	J. FONTAN	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

UNIVERSITE PAUL SABATIER

TABLEAU DU PERSONNEL
SCIENCES

DIRECTION DE L'UNIVERSITE

M. LARENG	Président
M. MATHIS	1er Vice-Président
M. MARTIN	2ème Vice-Président

U.E.R. SCIENTIFIQUES

HONORARIAT

M. BEDOS	Professeur honoraire
M. BLAIZOT	Doyen honoraire
M. CAPDECOMME	Doyen honoraire, Recteur honoraire correspondant de l'Institut
M. DIEHL	Professeur honoraire
M. DUPOUY	Membre de l'Institut, Doyen honoraire, Directeur Général honoraire du C.N.R.S., Professeur honoraire.
M. DURAND Emile	Doyen honoraire
M. ESCANDE	Professeur honoraire, Membre de l'Institut
M. GAUSSEN	Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. JACQUES	Professeur honoraire
M. MASDUPUY	Professeur honoraire
M. MATHIS	Doyen honoraire
M. MIGNONAC	Professeur honoraire
M. MORQUER	Professeur honoraire, Correspondant de l'Institut
M. SECONDAT	Professeur honoraire
M. TESSIE-SOLIER	Professeur honoraire
M. VANDEL	Professeur honoraire, Membre de l'Institut

PROFESSEURS

M. CASTERAS	Géologie, Correspondant de l'Institut
M. CAPDECOMME	Minéralogie, Correspondant de l'Institut
M. NOUVEL	Biologie générale
M. GALLAIS	Chimie, Correspondant de l'Institut
M. DURAND Emile	Physique
M. FERT	Physique
M. LESBRE	Chimie organique
M. BRUNEL	Physiologie végétale
M. HURON	Mathématiques appliquées
M. MARGULIS	Pédologie
M. TRICHE	Chimie Analytique et Spectrographie
M. LEDOUX	Zoologie appliquée
M. RIVALS	Agriculture
M. PERRIER	Physique
M. MATHIS	Chimie
M. ORLIAC	Géochimie et Minéralogie
M. LAFOURCADE	Physique
M. ANGELIER	Ecologie
Melle DE FERRE	Botanique
M. FARRAN	Minéralogie et Géotechnique
M. LAUDET	Physique Théorique et Calcul Numérique
M. SERFATY	Biologie Animale
M. LAGASSE	Electrotechnique
M. BLANC	Physique Nucléaire
M. LEREDDE	Botanique
M. LELUBRE	Géologie
M. TROCHAIN	Botanique
M. LALAGUE	Mathématiques générales
M. BOUIGUE	Astronomie
M. COUCHET	Physique
M. LASCOMBES	Botanique
M. ASSELINEAU	Chimie Biologique
M. MAURET	Chimie systématique
M. AGID	Physiologie
M. MONTANT	Cryptogamie
M. GAUTIER	Physique
M. CRUMEYROLLE	Mathématiques
M. GOURINARD	Géologie
M. PULOU	Minéralogie
M. CAMBOU	Physique spatiale
M. MIQUEL	Chimie
M. LACOSTE	Electrotechnique
M. THIBAULT	Mécanique Rationnelle et Appliquée
M. MASCART	Mathématiques
M. MEDIONI	Psychophysiologie
M. RAYNAUD Pierre	Physiologie animale
M. ZALTA	Chimie Biologique
M. SEVELY	Electrotechnique
M. POMMIEZ	Mathématiques
M. REY Paul	Biologie végétale
M. COULOMB	Physique
M. TRINQUIER	Physique
M. MARONI	Chimie
M. BEETSCHEN	Biologie générale
M. DERACHE	Physiologie animale
M. SATGE	Chimie organique
M. LATTES	Chimie
M. VEDRENNE	Géophysique
M. DURAND-DELGA	Géologie
M. CARRARA	Physique
M. JEANNIN	Chimie Minérale
M. MAHENC	Chimie
M. MIROUZE	Géologie
M. BITSCH	Zoologie

PROFESSEURS ASSOCIES

M. ANDERSON	Physique Spatiale
M. LUNC	Mathématiques

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. PICCA	Physique
M. MERIC	Mathématiques appliquées
Mme LECAL	Zoologie
M. PILOD	Physique
M. LARROQUE	Physique
M. BARRANS	Chimie
Mme LAFON	Mathématiques
Melle LAPEYRE	Mathématiques - Informatique
M. BERTRAND	Chimie
M. DESQ	Mathématiques
M. ROCARD	Electronique
M. DEGEILH	Physique
M. POILBLANC	Chimie
M. TOUZE	Physiologie végétale
M. FRASNAY	Mathématiques
M. CASSAGNAU	Zoologie
M. GUERIN	Mathématiques
M. PESCIA	Physique
M. SOUQUET	Géologie
M. SCHNEIDER	Biologie cellulaire
M. SICARD	Biologie génétique
M. de LOTH	Chimie physique
M. MARTIN J.C	Génie Electrique
M. SAPORTE	Physique
M. PERENNOU	Informatique
M. THENOZ	Génie civil
M. REY Gérard	Electronique,Electrotechnique, Automatique
M. CAUSSINUS	Mathématiques Appliquées
M. DURAND Ph.	Physique
M. CASTAN	Informatique
M. REME	Mesures Physiques

MAITRES DE CONFERENCES

M. FONTAN	Physique nucléaire
M. BAUDRAS	Chimie biologique
M. ATTEIA	Mathématiques
M. CALVET	Mécanique des fluides
M. PAGANI	Physique
M. CUPPENS	Mathématiques
Melle BARBANCE	Mathématiques
M. VERDIER	Physique

M. GILLY	Génie mécanique
M. BEAUFILS	Informatique
M. COTTU	Génie mécanique
M. ROUTIE	Génie chimique
M. MARAL	Physique
M. BERTHELEMY	Zoologie
M. HURAUX	Physique
M. LEGRAND	Génie civil
M. ABATUT	Electronique, Electrotechnique, automatique
M. SOTIROPOULOS	Chimie organique
Mme GERVAIS	Chimie inorganique
M. BONEL	Chimie
M. MAUSS	Mécanique
M. TERJANIAN	Mathématiques
M. BANCEL	Mathématiques
M. JOSSERAND	Mesures Physiques
M. BETOURNE	Informatique
M. CAMPAN	Psychophysiologie
M. CLERC	Mécanique
M. GRIFONE	Mathématiques
M. ETTINGER	Mathématiques
M. LETAC	Mathématiques
M. BONNET Louis	Biologie
M. LOUARN	Génétique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

M. BACCAR	Chimie Organique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. PRADINES	Mathématiques
M. NGUYEN THANH VAN	Mathématiques
M. GALINIER Michel	Informatique

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. NOUGARO	Hydraulique Générale et appliquée
M. GARDY	Génie chimique
M. BIREBENT	Electronique appliquée
M. VOIGT	Chimie minérale
M. MONTEL	Chimie physique et electrochimie
M. THIRRIOT	Hydrodynamique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. GRUAT	Mécanique des fluides (hydraulique)
M. BUGAREL	Génie chimique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. HAMANT	Botanique
Melle BERDUCOU	Physiologie végétale
M. DAT	Mécanique des fluides
M. FALLOT	Biologie végétale (Viticulture et arboriculture)
M. TRUCHASSON	Mécanique
M. HOFFMANN	Electronique
M. ENJALBERT	Chimie
M. MARTY	Physique industrielle
M. LEFEUVRE	Electronique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. ANGELINO	Génie chimique
M. DABOSI	E.N.S.C.T.

MAITRES DE CONFERENCES

M. MATHIEU	Chimie analytique
M. TRANNOY	Physique (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. CASTAGNETTO	Mathématiques (E.N.S.E.E.I.H.T.)
M. GILOT	Génie chimique (Institut du Génie chimique)
M. CALMON	Techniques agricoles
M. MATHEAU	Electronique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. NOAILLES	Informatique

INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUEES DE TOULOUSE

PROFESSEURS

M. ROQUES	Chimie industrielle
M. GRATELOUP	Génie électrique
M. MASO	Génie civil
M. MIRA	Génie électrique

PROFESSEURS SANS CHAIRE

M. COLLETTE	Physique
M. FAGET	Physique
M. DURAND Gilbert	Chimie
M. SCHUTTLER	Physique

MAITRES DE CONFERENCES

M. LETURCQ	Génie électrique
M. SIRIEYS	Mécanique et Génie civil
M. BROUSSEAU	Physique

CHARGES D'ENSEIGNEMENT

M. LACAZE	Mathématiques

ADMINISTRATION

M. PRINEAU	Secrétaire Général de l'Université Paul Sabatier

Liste établie le 1er Novembre 1973

A la mémoire de mon grand-père

Ce travail a été effectué au Centre de Physique Atomique de l'Université Paul Sabatier de Toulouse, que dirige Monsieur le Professeur D. BLANC. Il m'a accueilli dans son laboratoire et c'est avec bienveillance qu'il m'a conseillé et encouragé tout au long de mes recherches. Il me fait à présent l'honneur de présider le jury de ma thèse. Je le prie de bien vouloir trouver ici l'expression de ma plus profonde gratitude.

-:- -:-
-:-

Monsieur le Professeur J. FONTAN anime le Groupe de Physique des Aérosols et Echanges Atmosphériques dans lequel je travaille. Il a constamment suivi et dirigé cette étude qu'il m'a permis de mener à bien. Je tiens à l'assurer de ma plus sincère reconnaissance.

Monsieur le Professeur D. VOIGT, Directeur de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Toulouse, a été mon maître à cette école. C'est à son enseignement que je dois d'avoir pu mener à bien la mise au point des méthodes d'analyse chimique. Je lui exprime ici ma respectueuse reconnaissance et je le remercie d'avoir accepté de siéger à mon jury pour juger de mon travail.

Il m'est très agréable de remercier Monsieur le Professeur G. LAMBERT qui a accepté de me parrainer au C.N.R.S. et m'a toujours prodigué ses conseils compétents. Je le remercie d'avoir bien voulu faire partie de mon jury.

Monsieur le Docteur D.H. PEIRSON, du Centre de l'Energie Atomique de Harwell, a accepté de participer au jury de ma thèse. Je lui en suis particulièrement reconnaissant. Qu'il sache aussi combien je suis sensible à l'honneur qu'il me fait de venir à Toulouse, malgré ses multiples occupations, pour juger de la qualité scientifique de mon travail.

J'ai été durant trois années boursier du Commissariat à l'Energie Atomique ; ceci m'a permis de débuter mes recherches dans de très bonnes conditions et de bénéficier de l'aide scientifique de chercheurs de cet organisme. Je remercie Monsieur J. PRADEL, Chef du S.T.E.P.P.A., pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude.

J'ai été remarquablement secondé durant la phase expérimentale de ce travail par Messieurs Régis HUGUET, Jean-Pierre LACOMBE, Georges CROZAT et Alain JULIAN. Plus que des collaborateurs, ils sont devenus de vrais amis et je tiens à les remercier ici bien sincèrement pour toute l'amitié et l'aide qu'ils m'ont apportées.

Madame Monique DELAPART a pris une part très importante dans les opérations d'analyse chimique . Sa rare conscienceprofessionnelle et sa grande gentillesse m'ont été d'une aide très précieuse, et je l'en remercie tout particulièrement.

J'ai trouvé un appui efficace et toujours disponible ainsi que des conseils particulièrement compétents chez Messieurs Jean SERVANT et Aimé DRUILHET. Je les remercie bien sincèrement pour l'aide qu'ils m'ont apportée dans le traitement et l'interprétation de mes résultats.

J'exprime également ma reconnaissance à tous mes camarades du Centre pour leur soutien amical et plus particulièrement à Messieurs BOUVILLE, BIROT et DOMERGUE.

J'adresse enfin mes sincères remerciements au personnel technique et administratif du laboratoire. Je remercie tout spécialement Mademoiselle G. GUILLE et Monsieur M. BELINGUIER qui ont assuré la réalisation matérielle de ce mémoire avec un soin et une amabilité constants.

☆ ☆
☆

RESUME

Le but de ce travail a été d'étudier au moyen d'éléments radioactifs d'origines diverses (^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Po, ^{210}Pb) certains problèmes liés au transport et à l'élimination des aérosols dans la troposphère.

L'étude est abordée sous deux aspects complémentaires :

- expérimentalement, avec la mesure simultanée de ces éléments dans l'air et les précipitations, à Toulouse dans le Sud-Ouest de la France, de façon continue entre 1965 et 1969 et avec des temps de prélèvement courts (2 à 3 j);
- de manière théorique, par simulation numérique sur modèles reposant sur l'équation de diffusion.

On met en évidence l'influence importante des phénomènes de lessivage et de la variabilité des sources sur les variations d'activité enregistrées dans l'air au niveau du sol. Les rapports d'activité sont particulièrement intéressants pour éliminer les effets des phénomènes de lessivage.

Les résultats montrent que le ^{210}Po dans la troposphère provient bien de la désintégration du ^{210}Pb présent dans l'air et qu'il y a lieu par ailleurs de reconsidérer le rapport des taux de production des éléments cosmogéniques (Q_{Be}/Q_{P} corrigé de l'ordre de 37).

L'étude des répartitions verticales des éléments radioactifs dans l'atmosphère permet de chiffrer à environ 3-6 m^2/s le coefficient d'échange vertical moyen dans la troposphère et à 1/30-1/40 j^{-1} le coefficient de lessivage dans la couche comprise entre 2 et 6 km d'altitude.

La notion de temps de séjour permet de faire le bilan d'un élément dans un domaine donné. Les valeurs expérimentales des temps de séjour obtenues avec les différents éléments radioactifs confirment l'ordre de grandeur des coefficients d'échange et de lessivage déterminés dans la troposphère. Dans ces conditions, le temps de séjour d'un élément dans la troposphère dépend principalement de la position de sa source vis-à-vis des phénomènes d'élimination. Il varie ainsi, pour des éléments produits de façon continue dans l'atmosphère, entre une vingtaine de jours pour ceux émis près du sol et une centaine de jours pour ceux produits au niveau de la tropopause.

ABSTRACT

The purpose of this work is to study, by means of radioactive elements of various origins (^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Po, ^{210}Pb), certain problems related to the transport and elimination of aerosols in the troposphere.

The study is undertaken in two complementary aspects :

- experimentally, by simultaneous measurements of these elements in air and precipitations, at Toulouse in S.W. France, continuously between 1965 and 1969, and with short duration samplings (2 - 3 days) ;
- theoretically, by numerical simulation on models based upon the diffusion equation.

There appears the important influence of the scavenging processes and of the variability of sources upon the variations of activity recorded in the air at ground level. The activity ratios are particularly interesting, in order to eliminate the effects of the scavenging processes.

The results show that the ^{210}Po present in the troposphere comes, effectively, from the disintegration of the ^{210}Pb present in the air and that, on another hand, one must reconsider the ratio of cosmogenic element production rates (corrected value of about 37 for Q_{Be}/Q_{P}).

The study of the vertical distributions of radioactive elements in the atmosphere allows to estimate at about 3 - 6 m^2/s the mean vertical exchange coefficient in the troposphere and at 1/30-1/40 d^{-1} the scavenging coefficient in the layer extending between 2 and 6 km in altitude.

The notion of residence time allows to estimate the budget of an element within a given volume. The experimental values of residence times, obtained with the various radioactive elements, confirm the order of magnitude of the exchange and scavenging coefficients calculated in the troposphere. In these conditions, the tropospheric residence time of an element depends essentially upon the position of its source in relation to the removal processes. It thus varies, for elements produced continuously in the atmosphere, from about twenty days for those produced near the ground to about a hundred days for those produced at the tropopause level.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GÉNÉRALE.....page 1

PREMIÈRE PARTIE : DESCRIPTION EXPÉRIMENTALE..... 5

CHAPITRE I : COLLECTION DES ELEMENTS RADIOACTIFS..... 7
I. Prélèvements dans l'air au niveau du sol..... 7
II. Air en altitude..... 9
III. Pluie..... 9
IV. Expériences effectuées..... 9
CHAPITRE II : METHODES D'ANALYSE..... 11
I. Analyse chimique..... 11
I.1 Principe..... 11
I.2 Séparation des éléments collectés sur un filtre..... 11
I.3 Séparation des éléments dans les précipitations..... 13
I.4 Purification des éléments..... 15
I.5 Rendements..... 15
II. Détection..... 16
III. Calcul des résultats..... 16
IV. Conclusion..... 17

DEUXIÈME PARTIE : ÉTUDE DES ÉLÉMENTS RADIOACTIFS..... 19

CHAPITRE III : ETUDE DES VARIATIONS DANS LA TROPOSPHERE..... 21
I. Rappel des travaux antérieurs..... 21
II. Traitement des résultats expérimentaux..... 24
III. Variations dans l'air au niveau du sol..... 26
III.1 Variations mensuelles..... 26
A. RESULTATS A TOULOUSE..... 26
B. COMPARAISON AVEC D'AUTRES STATIONS..... 27
III.2 Etudes de corrélation..... 28
III.3 Discussion..... 30
IV. Variations avec l'altitude..... 32
IV.1 Mesures dans l'air..... 33
IV.2 Mesures dans les pluies..... 35
V. Influence des échanges verticaux..... 36
VI. Discussion..... 37
CHAPITRE IV : ETUDE DES SOURCES DE POLONIUM-210 DANS LA TROPOSPHERE..... 39
I. Sources de Polonium-210 dans l'atmosphère..... 39
I.1 Source fossile..... 39
I.2 Source tellurique..... 39

I.3 Source maritime..... 40
I.4 Source stratosphérique..... 40
I.5 Source artificielle..... 40
II. Résultats expérimentaux et méthodes de traitement.. 40
III. Discussion des sources de Polonium-210 dans la troposphère..... 41
III.1 Origine fossile..... 41
III.2 Origine tellurique..... 42
III.3 Origine maritime..... 43
III.4 Origine stratosphérique..... 43
III.5 Effets d'orages..... 44
IV. Conclusion..... 45

CHAPITRE V : ETUDE DE LA PRODUCTION DES ^{7}Be ET ^{32}P DANS L'AIR ET DE L'UTILISATION DE LEUR RAPPORT D'ACTIVITE..... 46
I. Etude de la production des éléments cosmogéniques... 46
I.1 Rappel des travaux antérieurs..... 46
I.2 Etude des taux de production..... 47
II. Simulation numérique en régime dépendant du temps.. 49
II.1 Modèles de simulation..... 49
II.2 Expériences sur modèles..... 49
III. Discussion..... 51

TROISIÈME PARTIE : TEMPS DE SÉJOUR..... 53

CHAPITRE VI : ETUDE DU TEMPS DE SEJOUR DES AEROSOLS..... 55
I. Etude théorique des temps de séjour..... 55
I.1 Généralités..... 55
I.2 Expression du temps de séjour..... 56
A. HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES..... 56
B. REGIME STATIONNAIRE..... 56
C. REGIME NON STATIONNAIRE..... 59
I.3 Conclusion..... 59
II. Travaux antérieurs..... 60
II.1 Temps de séjour dans la stratosphère..... 60
II.2 Temps de séjour dans la troposphère..... 61
A. DESCENDANTS DU RADON..... 61
B. ELEMENTS COSMOGENIQUES..... 62
C. AUTRES DETERMINATIONS..... 63
D. DISCUSSION..... 63
III. Etude numérique des temps de séjour dans la troposphère..... 64
III.1 Modèles numériques..... 64
A. PRINCIPE..... 64
B. DESCRIPTION DES MODELES..... 65
III.2 Etude des temps de séjour troposphériques dans le cadre des hypothèses de stratification, en régime indépendant du temps..... 67
A. TEMPS DE SEJOUR DANS L'ENSEMBLE DE LA TROPOSPHERE..... 67
B. TEMPS DE SEJOUR DANS LES COUCHES TROPOSPHERIQUES..... 70
C. CONCLUSION..... 72

III.3 Etude des temps de séjour troposphériques apparents déterminés au moyen des produits radioactifs, dans le cas où les hypothèses simplificatrices ne sont plus applicables... 72
A. SOURCE NON STRATIFIEE EN REGIME INDEPENDANT DU TEMPS..... 73
B. REGIME DEPENDANT DU TEMPS..... 74
III.4 Conclusion..... 76
IV. Evaluation pratique des temps de séjour..... 76
V. Conclusion..... 77

CONCLUSION GÉNÉRALE..... 79

ANNEXES :

A-1 Variations d'activité dans l'air à Toulouse..... 85
A-2 Variations d'activité dans l'air au Pic du Midi et à Tarbes..... 89
A-3 Mesures dans les pluies - Tableaux de résultats.... 90
A-4 Mesures en altitude - Tableaux de résultats..... 92

B-1 Méthodes d'analyse chimique des éléments radioactifs..... 93
B-2 Dosage des Plomb et Phosphore stables..... 98

C-1 Corrections apportées aux comptages..... 100
C-2 Calcul d'erreurs..... 102

D - Mise au point d'appareils de prélèvement en altitude..... 104

BIBLIOGRAPHIE..... 109

☆ ☆
☆

AVANT-PROPOS

Les aérosols en suspension dans l'air interviennent dans de nombreux problèmes de physique de l'atmosphère : formation d'hydrométéores, modification de certains processus, bilan radiatif, physico-chimie de l'atmosphère...Ils sont introduits de manières diverses dans l'atmosphère dont ils suivent ensuite les mouvements de circulation jusqu'à leur enlèvement au niveau de la troposphère par le cycle de la vapeur d'eau ou par capture à la surface terrestre. Les aérosols provenant du rejet dans l'atmosphère de polluants de toutes natures sont actuellement en continuelle augmentation et la lutte contre la pollution de l'air parait devoir être un problème de première importance dans les années à venir.

Les éléments radioactifs naturels et artificiels, fixés sur ces aérosols, sont utilisés depuis une vingtaine d'années comme indicateurs atmosphériques. Ils permettent d'étudier les problèmes liés aux phénomènes de transport des aérosols ou relatifs à leur élimination de l'air. Les produits de fission ont déjà rendu de grands services et fait progresser de manière appréciable nos connaissances sur les phénomènes de circulation dans la stratosphère et plus spécialement sur les échanges entre les divers réservoirs atmosphériques naturels (troposphère, stratosphère, hémisphères).

Les phénomènes d'échanges et d'élimination ont par contre été bien moins étudiés dans la troposphère et les résultats obtenus ont parfois été controversés. L'utilisation de certains éléments y a de plus été remise en question. Le but de mon travail a été d'étudier ces différents problèmes au moyen de traceurs radioactifs à moyenne et longue période. j'ai été amené à faire le point sur l'intérêt de ces traceurs et à préciser ou discuter un certain nombre de conclusions antérieures relatives à leur formation, à leur transport à grande échelle, et à leur temps de séjour.

L'originalité de la façon dont j'ai abordé le problème réside d'une part dans la mesure simultanée de cinq éléments ayant des origines et des périodes différentes et d'autre part dans la réalisation de prélèvements continus de durée relativement courte par rapport à ce qui avait été fait précédemment. J'ai par ailleurs étudié les phénomènes de manière théorique, par simulation sur modèles, afin d'interpréter plus commodément certains résultats expérimentaux.

☆ ☆
☆

INTRODUCTION GENERALE

La mise en suspension dans l'atmosphère, lors des explosions nucléaires, de produits radioactifs artificiels, dangereux pour l'homme, a nécessité la surveillance de la radioactivité de l'air et la mise en place de réseaux de détection à la surface de la terre.

La radioactivité artificielle restant finalement surtout localisée dans la stratosphère, il a été nécessaire d'étudier la source de produits radioactifs que cela représentait pour la troposphère. De grands programmes de mesures en avions et ballons ont donc été développés dans la stratosphère. On a ainsi effectué des bilans dans ce réservoir, notamment après chaque série d'essais nucléaires, et suivi la manière dont les éléments artificiels étaient éliminés. Cela a permis d'y étudier les temps de séjour et de voir qu'il existait, dans ce domaine supposé relativement calme, des phénomènes importants de circulation. On a en particulier mis en évidence l'existence de mouvements zonaux et méridiens (boucles de circulation entre les pôles et l'équateur) ainsi que d'échanges entre les hémisphères. On a aussi découvert, parmi les processus d'échanges entre la stratosphère et la troposphère, des phénomènes de descentes rapides d'air stratosphérique dans les basses couches, en liaison avec les courants jets.

Au niveau de la troposphère, on a surtout mesuré le bilan des retombées à la surface du globe afin de le comparer à celui de la source stratosphérique. On a ainsi constaté l'existence de maxima de dépôts aux latitudes moyennes et au printemps-été. On a enfin comparé les retombées dans les deux hémisphères.

La troposphère restait paradoxalement bien moins étudiée que la stratosphère en ce qui concerne les phénomènes de circulation et d'élimination. On y avait évalué un temps de séjour de l'ordre d'un mois, ou suivi des échanges interhémisphériques en utilisant les produits de fission à courte période peu après les explosions, mais les résultats étaient finalement bien moins importants que ceux obtenus pour la stratosphère. On connaissait déjà relativement bien la circulation zonale mais par contre assez mal la circulation méridienne ainsi que les phénomènes d'échanges verticaux et d'élimination.

Les nombreuses mesures réalisées dans le monde ont conduit les géophysiciens à essayer de tirer parti des résultats déjà obtenus et à utiliser les éléments radioactifs à longue période, non seulement artificiels mais aussi naturels, comme indicateurs atmosphériques. On a ainsi abordé l'étude des temps de séjour troposphériques, les échanges verticaux dans les hautes couches... Cependant, malgré les perspectives prometteuses, les travaux se sont assez vite ralentis, les résultats obtenus ont été souvent controversés et il a semblé que l'on atteignait une limite dans l'utilisation de ces éléments. Les mesures réalisées, en effet, n'étaient généralement pas adaptées aux buts des recherches. La plupart correspondaient à des prélèvements de longue durée et ne concernaient qu'un très petit nombre d'éléments, en général de même origine. D'autres au contraire, en faible nombre, portaient sur un plus grand nombre d'éléments mais présentaient souvent de grandes imprécisions et surtout étaient relatives à des prélèvements très localisés dans le temps et dans l'espace. On disposait donc soit de résultats moyens au niveau du sol, représentatifs mais peu exploitables -à cause du nombre insuffisant d'éléments et de la variation importante des paramètres atmosphériques durant le prélèvement-, soit de mesures bien plus fines, mais difficilement reliables, moins représentatives et généralement limitées à la stratosphère. On s'est donc contenté le plus souvent d'interpré-

ter des variations moyennes, en émettant parfois des hypothèses sans pouvoir les vérifier.

A une époque où les problèmes posés par les rejets de polluants (principalement dans la troposphère) devenaient de plus en plus importants, il était essentiel de savoir ce que devenaient les produits introduits.

J'ai commencé mes recherches dans le cadre du Commissariat à l'Energie Atomique, à un moment où celui-ci s'intéressait à l'étude des éléments radioactifs à longue période dans l'air, car le besoin se faisait sentir d'augmenter les connaissances sur les différents traceurs radioactifs utilisables.

Il était nécessaire, pour pouvoir progresser par rapport aux travaux antérieurs, de changer de méthode et ma première préoccupation a été de réaliser des mesures continues avec des temps de prélèvement courts, afin de les relier bien plus précisément aux conditions atmosphériques et de pouvoir étudier les phénomènes à l'échelle des masses d'air.

Fallait-il cependant implanter un réseau de mesures en différents endroits, comme précédemment, ou pouvait-on se contenter d'un seul point de prélèvement ? Les résultats obtenus avec les réseaux montraient que chaque station était, en valeur moyenne, représentative de ce qui se passait dans la bande de latitude. A plus petite échelle, les mécanismes des phénomènes d'échanges ou de lessivage pouvaient aussi être traités avec un seul point de prélèvement. De plus la position de la zone de mesure, à la limite du front polaire, permettait d'étudier ce qui se passait de part et d'autre de celui-ci. D'autre part, l'intérêt des mesures résidait avant tout dans la réduction des temps d'échantillonnage; or, les techniques mises en oeuvre étant très délicates et les analyses longues et complexes, il était pratiquement impossible à l'échelle du laboratoire de traiter un nombre élevé d'échantillons. Enfin, la mise en place d'un réseau à mailles nécessairement larges, étant donné les caractéristiques des éléments à étudier, se heurtait à des difficultés d'implantation et de fonctionnement en pays étranger. J'ai donc choisi de limiter mes expériences à un seul point de prélèvement, en me réservant de faire ensuite des comparaisons éventuelles avec d'autres stations dans le monde pour tester la représentativité de mes résultats.

Comme je l'ai déjà indiqué, les études à un seul traceur sont assez vite limitées. Les variations de concentration d'un élément dépendent en effet à la fois de sa source et des phénomènes de transport et d'élimination. Ces deux derniers points étant sensiblement les mêmes pour tous les éléments, il est particulièrement intéressant de mesurer simultanément plusieurs éléments pour pouvoir, par l'étude de leurs rapports, minimiser ou même éliminer l'influence de ces deux phénomènes. J'ai donc choisi de détecter plusieurs groupes d'éléments d'origines différentes, présentant la caractéristique commune d'être à moyenne ou longue période.

L'étude des descendants à longue période du radon (^{210}Pb et ^{210}Po) prolongeait tout naturellement les recherches déjà menées au Centre sur les descendants à courte période et permettait de disposer d'indicateurs originaires des basses couches. Leur utilisation dans les problèmes de temps de séjour était de plus en plein développement.

Les éléments cosmogéniques à moyenne période (^{7}Be et ^{32}P), plutôt représentatifs des hautes couches, apparaissaient aussi comme très intéressants, de par leurs périodes différentes, pour étudier notamment les processus et les temps de descente de l'air des hautes couches dans la basse atmosphère.

J'ai enfin considéré le produit de fission le plus couramment étudié (^{90}Sr) et caractéristique, en dehors des périodes récentes d'essais nucléaires, de l'air stratosphérique.

J'ai poursuivi mes expériences de 1965 à 1969, en étendant également les mesures aux précipitations et à l'air en altitude. J'ai ainsi rassemblé un ensemble de résultats que j'ai entrepris d'interpréter et d'appliquer à l'étude de problèmes relatifs aux phénomènes d'échanges verticaux et d'élimination dans la troposphère. Je me suis cependant assez vite heurté à la complexité des phénomènes, souvent antagonistes, qui rendait très délicate toute interprétation directe. J'ai donc tiré parti de la courte durée des prélèvements réalisés et appliqué aux résultats des méthodes statistiques afin de séparer et de mettre en évidence les différents phénomènes.

Ceci n'a pas toujours été suffisant car l'influence réelle de certains paramètres n'était pas évidente à première vue. J'ai donc entrepris des études de simulation numérique sur modèles, tenant compte des principaux paramètres atmosphériques, afin de décomposer ou de combiner les différents phénomènes et de préciser leurs influences. Ces études théoriques se sont avérées toujours très utiles, sinon indispensables dans certains cas, et m'ont souvent per-

mis d'interpréter les phénomènes, de manière plus sûre que la seule étude "descriptive" des résultats expérimentaux ne permettait de le faire.

La première partie de ce mémoire présente un résumé des méthodes expérimentales de mesure (prélèvement, analyse, détection) que j'ai mises au point. Leur place, volontairement réduite, reflète peu l'importance réelle de la phase expérimentale longue et ingrate.

La seconde partie est consacrée à l'interprétation des variations d'activité des éléments et à leur utilisation dans l'étude de divers problèmes. Ceci m'a amené en particulier à confirmer ou à remettre en question les sources de certains éléments comme le ^{210}Po ou les éléments cosmogéniques.

Les divers résultats ainsi obtenus permettent d'aborder alors le problème des temps de séjour, lié à l'élimination des aérosols de l'atmosphère, et qui fait l'objet de la dernière partie. C'est sans doute dans l'étude de cette question que la comparaison entre théorie et expérience est la plus nécessaire et instructive, étant donné la complexité des phénomènes mis en jeu.

Les possibilités offertes par l'étude des traceurs radioactifs sont considérables et il pourra paraître surprenant que je n'aborde ou ne développe pas certaines questions. J'ai du en fait, devant le champ de recherches possibles, me limiter à présenter ici les problèmes qui m'ont semblé les plus importants ou à l'ordre du jour. Ce mémoire résume ainsi une partie des travaux que j'ai poursuivis entre 1964 et 1973.

☆ ☆
☆

PREMIERE PARTIE

DESCRIPTION EXPERIMENTALE

CHAPITRE I

COLLECTION DES ELEMENTS RADIOACTIFS

Les éléments radioactifs que j'ai étudiés sont difficiles à détecter en raison de leurs très faibles activités, inférieures de plusieurs ordres de grandeur à celles de la radioactivité naturelle ou artificielle à courte et moyenne période ; leur détermination directe n'est en général pas possible, même par spectrométrie γ classique dans le cas du ^{7}Be, à cause des interférences possibles avec divers autres éléments. Il faut donc réaliser des prélèvements importants d'air ou de pluie et avoir recours, pour séparer et purifier ces éléments, à des méthodes chimiques élaborées, suivies de comptages prolongés à l'aide de détecteurs à haute efficacité et faible bruit de fond. Le tableau I.1 résume les caractéristiques des radionucléides étudiés, les activités minimales pouvant être de 10 à 20 fois plus faibles que les valeurs moyennes indiquées, calculées à partir des résultats obtenus à Toulouse.

I. PRELEVEMENTS DANS L'AIR AU NIVEAU DU SOL

Les volumes d'air nécessaires pour effectuer une mesure dépendent non seulement des niveaux d'activité très variables, mais aussi du rendement des méthodes d'analyse et des performances des détecteurs (efficacité, bruit de fond). S'il est possible, dans les cas favorables où les niveaux de concentration sont suffisants, de réaliser une mesure avec quelques milliers de m^3 d'air, le dosage convenable de divers éléments nécessite en général des prélèvements de l'ordre de plusieurs dizaines de milliers de m^3 d'air. Les mesures réalisées précédemment dans le monde, au moyen d'appareillages de moyenne puissance (débits de 10 à 100 m^3/h), portent donc en général sur des temps assez longs, de plusieurs dizaines de jours.

Désirant réduire le plus possible le temps d'échantillonnage, et n'étant pas limité

Elément	Période	émission principale		activités moyennes		Origine
		nature	énergie (MeV)	air 10^{-15} Ci/m^3	10^{-12} Ci/l	
^{90}Sr	29 a	β	0.54	2.80	1.77	Produit de fission
^{7}Be	53.7 j	γ	0.48(12%)	63.2	50	Elément cosmogénique
^{32}P	14.45 j	β	1.71	2.16	1.15	Elément cosmogénique
^{210}Pb	22 a	β	0.017(85%)	14	5.2	Descendant du radon
^{210}Po	138 j	α	5.30	1.08	1.03	Descendant du radon

TABLEAU I.1 - *Caractéristiques des radionucléides étudiés.*

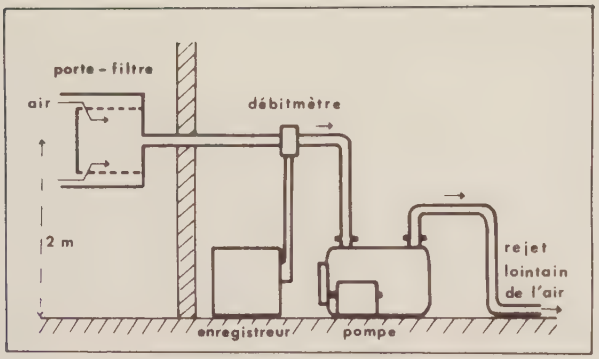

FIGURE I.1 - *Dispositif de prélèvement dans l'air.*

au niveau du sol par les puissances disponibles ou par l'encombrement de l'appareillage, j'ai utilisé des dispositifs à performances élevées. Le principe de collection des éléments radioactifs, fixés sur les aérosols présents dans l'air, consiste à filtrer l'air à travers un papier filtre au moyen d'une pompe placée en aval. La figure I.1 donne le schéma du dispositif que j'ai utilisé.

J'ai choisi d'utiliser des turbines, de préférence aux pompes à palettes, en raison des débits d'air importants qu'elles autorisent. Elles présentent cependant l'inconvénient d'être très sensibles à la perte de charge, mais on limite cette dernièreen utilisant de grandes surfaces de filtre. Il est alors préférable, étant donné les débits élevés, de rejeter l'air filtré suffisammentloin pour éviter une dilution parasite de l'air à analyser.

J'ai employé dans un premier temps (de Septembre 1965 à Août 1966) des ensembles de pompage réunissant trois aspirateurs Nilfisk de 500 Watt chacun, et permettant d'obtenir, dans les conditions opératoires, des débits de l'ordre de 200 m^3/heure. J'ai utilisé ensuite des ensembles plus importants, assurant des débits d'air de 600 m^3/heure, et constitués par une turbine B.V.C. à 6 étages entrainée par un moteur électrique (Novacem) de 7.5 C.V.. La figure I.2 donne la caractéristique de perte de charge en fonction du débit, pour un tel ensemble.

Le choix du filtre utilisé a été guidé par des questions d'efficacité, de colmatage, de résistance mécanique, de facilité d'attaque chimique et de prix derevient (grand nombre d'analyses). J'ai finalement retenu le papier-filtre Poëlmann-Schneider jaune qui présente une bonne efficacité (95% dans les conditions opératoires) et un faible prix. Ce filtre, constitué de fibres d'alfa, se prête bien à une attaque chimique destructive, malgré l'inconvénient dû à sa charge en amiante. Sa perte de charge étant relativement élevée, il a fallu choisir un compromis de surface (0.33 m^2) assurant des débits convenables sans complication de la méthode d'analyse. J'ai enfin retenu la géométrie cylindrique, commode et peu encombrante, de préférence aux cartouches plissées présentant à surface égale, une perte de charge supérieure. La mesure du débit est effectuée avec un débitmètre à diaphragme normalisé, placé en série, et il est enregistré en permanence pour tenir compte des arrêts éventuels de courant et du colmatage du filtre. Son intégration permet ainsi de connaître avec une bonne précision (1 à 2%) la quantité totale d'air filtré. Il faut noter que le colmatage ne modifie pas beaucoup le débit -variation inférieure à 5% entre le début et la fin d'un prélèvement de 4 jours- ce qui n'entraine donc pas d'erreur systématique sensible sur la représentativité dans le temps du prélèvement.

J'ai utilisé le même genre d'installation lors d'expériences au Pic du Midi, à 3000m d'altitude environ dans la chaine des Pyrénées. La pression plus faible diminuant alors les performances de la turbine, le débit moyen a été réduit à environ 450 m^3 (N.T.P.)/heure. Il a fallu d'autre part utiliser en ce cas un dispositif à chicanes placé avant le filtre, pour éviter l'obturation des conduits d'aspiration par la neige.

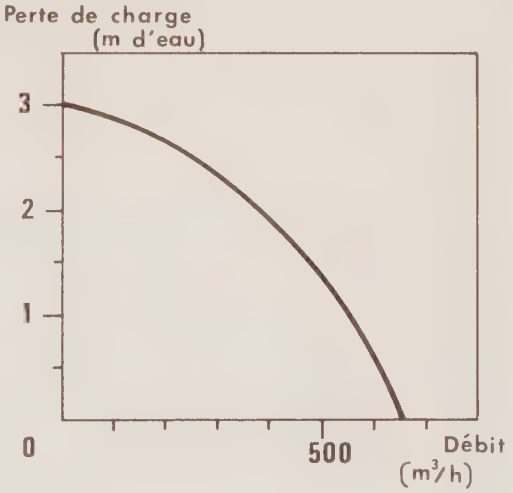

FIGURE I.2 - *Caractéristique de perte de charge en fonction du débit pour l'ensemble de pompage: turbine BVC - moteur de 7.5CV.*

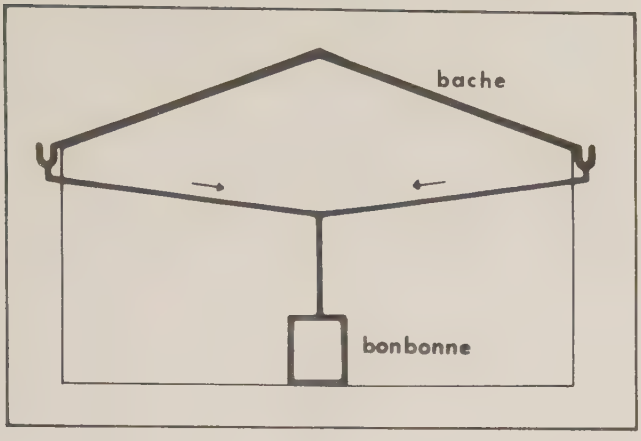

FIGURE I.3 - *Schéma de l'installation de collection des eaux de pluie.*

II. AIR EN ALTITUDE

La possibilité d'expériences en altitude m'étant offerte (RCP recherches aériennes du CNRS), j'ai effectué des mesures dans la troposphère, au moyen d'avions légers. J'ai pour cela réalisé des capteurs profilés, placés sous les ailes, utilisant la pression dynamique créée par la vitesse de l'avion. Le calcul des performances de ces appareils fait appel à divers paramètres : filtre utilisé, géométrie du capteur, performances de l'avion. On trouvera en Annexe D l'étude et la description de ces appareils.

J'ai utilisé le plus souvent un avion de tourisme de type CESSNA Centurion (version 210 à turbo-système) permettant de monter jusqu'à 11km d'altitude et d'atteindre des vitesses de 370 km/heure. Les débits volumiques obtenus sont ainsi de l'ordre de 1800 m^3/h, pour une vitesse de croisière de l'avion de 320 km/h, ce qui permet de réaliser deux prélèvements d'air suffisants au cours d'un vol de deux heures.

III. PLUIE

Les volumes nécessaires à une analyse convenable d'eau de pluie sont de l'ordre de plusieurs dizaines de litres. Afin d'analyser individuellement toutes les pluies de hauteur supérieure à 0.5 mm, et même de réaliser plusieurs prélèvements au cours d'une seule pluie, j'ai installé un pluviomètre de grandes dimensions (42 m^2). J'ai utilisé pour cela, comme surface de collection, le toit du laboratoire en le recouvrant d'une bâche de polyéthylène, afin d'éviter les rétentions et désorptions d'activité par le matériau du toit (figure I.3).

Un système de gouttières de PVC et de tuyaux de descente de polyéthylène amène les eaux recueillies dans des récipients de polyéthylène de 60 litres. Un petit pluviomètre situé à proximité indique la hauteur de pluie. Afin d'éliminer l'influence du dépôt sec, la bâche a été nettoyée très fréquemmentet j'ai pris soin d'écarter généralement les toutes premières fractions de pluie (quantités négligeables par rapport au total) ; j'ai vérifié que cela n'entrainait pas d'erreur sensible dans les analyses.

IV. EXPERIENCES EFFECTUEES

J'ai réalisé durant plusieurs années des mesures de ^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Po et ^{210}Pb dans l'air ou les précipitations, à Toulouse (43°N ; 01° E), en m'efforçant de réduire les temps de prélèvement et d'augmenter la précision des analyses. J'ai également effectué diverses campagnes de mesures en d'autres points du Sud-Ouest (Moissac, Pic du Midi, Tarbes).

IV.1 - Air au niveau du sol

A. MESURES A TOULOUSE

J'ai procédé, sans interruption entre Septembre 1965 et Décembre 1969, à des prélèvements d'air sur le campus universitaire de la Faculté des Sciences de Toulouse, situé en bordure de l'agglomération, à une hauteur de 2 mètres au-dessus du sol. Les mesures se répartissent en deux périodes :

. de Septembre 1965 à Août 1966, j'ai utilisé le premier type d'installation de pompage de moyenne puissance, d'où une durée de prélèvement relativement longue de l'ordre de 10 jours en moyenne. Durant cette période, seuls ont été analysés les ^{7}Be, ^{210}Pb et ^{210}Po ;

. de Septembre 1966 à Décembre 1969, j'ai utilisé les pompes à fort débit (600 m^3/h) ce qui m'a permis de réduire le temps de prélèvement à 2 ou 3 jours en moyenne (de 1 à 4 j). L'analyse a été étendue aux cinq éléments étudiés.

B. MESURES A MOISSAC

Afin de comparer les résultats donnés par des points de mesure séparés, j'ai réalisé, parallèlement aux mesures de la première période à Toulouse (Septembre 1965 - Août 1966), des prélèvements d'air à Moissac, situé à 65 km de

Toulouse dans la vallée de la Garonne (22 prélèvements simultanés).

C. MESURES A TARBES ET AU PIC DU MIDI

En vue d'une première étude de la répartition verticale des éléments dans l'air, j'ai suivi sur une période d'environ 1 mois (24 Février - 29 Mars 1967) les variations d'activité (5 éléments) à deux niveaux différents :

. au Pic du Midi (Observatoire) dans la chaîne des Pyrénées (altitude : 2800 m) ;

. à Tarbes (terrain militaire du G.A.L.A.T.) au pied des montagnes (altitude : 200 m).

Ces deux stations, situées à 150 km au Sud-Ouest de Toulouse, ont pratiquement les mêmes coordonnées géographiques. Les résultats sont sans aucun doute perturbés par la déformation des couches d'air par le relief, mais on peut considérer cependant que l'air au Pic du Midi est représentatif de l'air en altitude, étant donné la situation particulière de ce pic, détaché au Nord dans la chaine des Pyrénées. Les prélèvements, d'une durée de 2 ou 3 jours, ont été effectués simultanément dans les deux stations au moyen des dispositifs à fort débit, et tous les éléments ont été analysés *(cf. Annexe A-2)* .

IV.2 - Mesures dans les pluies à Toulouse

J'ai également étudié à Toulouse la radioactivité des précipitations, en analysant chaque pluie individuellement et en réalisant en certaines occasions des prélèvements fractionnés d'une même pluie. On peut distinguer deux périodes :

. de Février 1966 à Juin 1966, seuls ont été mesurés les ^{7}Be, ^{210}Pb et ^{210}Po (48 analyses) ;

. de Septembre 1966 à Juin 1967, tous les éléments ont été détectés (78 analyses).

(On trouvera en Annexe A-3 les résultats de ces mesures).

IV.3 - Mesures dans l'air en altitude

J'ai effectué, au cours de trois campagnes de mesures entre 1968 et 1969, plusieurs séries d'expériences en altitude dans la région toulousaine, en utilisant les capteurs embarqués en avion. Je n'ai cependant pas pu développer comme prévu le programme des mesures en altitude, étant donné le coût élevé de telles expériences (500 F l'heure de vol) et les restrictions de crédits ; j'ai donc dû en réduire le nombre, en profitant en général des vols d'essai et de mise au point des appareillages pour effectuer les prélèvements. Au total, 43 déterminations ont été réalisées, la mesure correspondante dans l'air au sol étant effectuée pour chaque journée d'expérience.

(On trouvera en Annexe A-4 les résultats de ces mesures ; il faut noter que,les temps de vol ayant souvent été réduits au minimum, certains éléments présentant des activités trop faibles -^{210}Po ou ^{32}P- n'ont pu toujours être détectés).

☆ ☆
☆

CHAPITRE II

METHODES D'ANALYSE (1)

I. ANALYSE CHIMIQUE

I.1 - Principe

Les échantillons à analyser se présentent donc, soit sous forme d'aérosols déposés sur des filtres (Poëlmann-Schneider jaune ou Arjomari 4004) de surface importante (0.33 ou 0.20 m^2), soit sous forme de grands volumes d'eau de pluie (30 à 60 l). Malgré les prélèvements considérables, les quantités de radionucléides collectées sont toujours très faibles, de l'ordre de dizaines de milliers d'atomes. On est donc contraint en général d'utiliser des entraineurs stables dont le rendement chimique est mesuré par gravimétrie en fin d'analyse. Dans le cas du ^{210}Po (particules α de 5.3 Mev), il n'existe pas d'isotope stable. On utilise un radiotraceur, le ^{208}Po, qui émet comme le ^{210}Po une particule α , mais dont l'énergie est différente (5.11 MeV). On sépare les activités respectives par spectrométrie α et on détermine ainsi, par simple comptage de l'activité du ^{208}Po, le rendement de récupération du ^{210}Po.

En ce qui concerne le ^{90}Sr, on utilise comme entraineur le strontium stable, mais on le marque en plus par du ^{85}Sr (SANDERSON, 1962).En fin d'analyse, la mesure de l'activité du ^{85}Sr, qui est émetteur γ , permet d'obtenir le rendement chimique. L'activité du ^{90}Sr n'est pas alors mesurée directement ; on détecte son descendant l'^{90}Y que l'on sépare du ^{90}Sr lorsque l'équilibre radioactif est établi entre les deux radionucléides.

Les processus de séparation sont un peu différents dans le cas de la pluie et dans celui des aérosols atmosphériques collectés sur filtres, en raison de la nature différente des milieux où se trouvent les éléments à analyser. C'est ainsi qu'il faut séparer les éléments, soit de grandes surfaces de papier filtre (pouvant contenir comme le filtre Poëlman-Schneider jaune une charge en amiante, ce qui introduit des quantités appréciables de silice et d'alumine), soit de grands volumes d'eaux de pluie. Les opérations de purification des éléments sont ensuite identiques dans les deux cas (*on trouvera en Annexe B-1 les méthodes détaillées d'analyse chimique*).

I.2 - Séparation des éléments collectés sur un filtre

Il s'agit des éléments contenus dans l'air et qui ont été recueillis par filtration. La figure II.1 présente le schéma de l'analyse chimique. Le détail des opérations est le suivant :

A. Les solutions étalonnées d'entraîneurs (30 mlg environ de chacun des ions par 10cm^3) sont mises dans un ballon contenant le filtre à analyser, de l'acide nitrique et de l'eau. Pour accélérer l'échange isotopique et permettre le passage en solution des éléments, on fait bouillir à reflux (réfrigérant ascen-

---

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue "Chimie Analytique" (MARENCO et al., 1968).

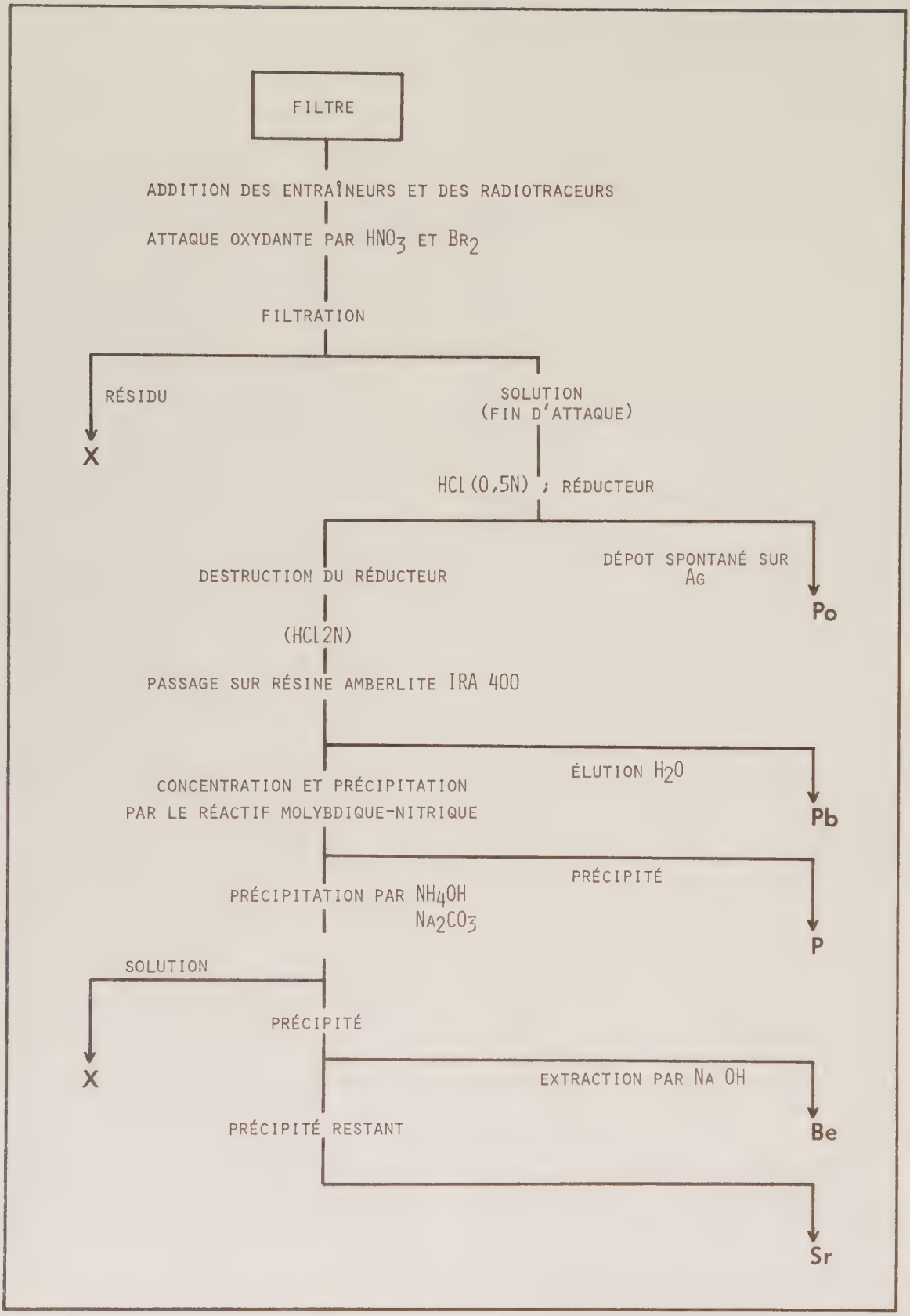

FIGURE II.1 - *Schéma de l'analyse chimique des filtres ayant collecté les aérosols atmosphériques.*

dant). On procède à une oxydation supplémentaire par le brome (DAJLEVIC, 1963), afin de bien attaquer les poussières qui pourraient présenter une gangue graisseuse (fumées des villes). Le but n'est pas ici de détruire la matière organique du filtre mais de solubiliser les éléments. Une filtration sous vide et un lavage à l'eau du résidu permettent une excellente récupération des éléments (supérieure à 90%).

B. Une partie des celluloses constituant le filtre a cependant été solubilisée et on les élimine en grande partie en les oxydant par HNO_3 et l'eau régale. On termine en passant en milieu chlorhydrique, que l'on fixe à 0.5 N, et on ajoute du chlorhydrate d'hydrazine (réducteur). A ce stade, on sépare le polonium qui se fixe spontanément par échange d'ions sur une plaque d'argent (DAJLEVIC, 1963). Le dépôt, limité à une seule face de la plaque, est à peu près total après 2 heures 1/2, en opérant à chaud (bain-marie) et en agitant la solution (PASCAL, 1964).

C. Après concentration de la solution et destruction du réducteur par HNO_3, on passe en milieu HCl concentré et on centrifuge pour éliminer la silice qui s'est insolubilisée. On amène par dilution la solution à HCl (2N) et on fait passer sur résine Amberlite IRA 400 (forme Cl^-) (dimensions 15 x 1 cm). Le plomb est retenu sous forme de complexe anionique avec les ions Cl^- (HENRY, 1961), cependant que les autres ions passent. On lave la résine par HCl (2N) pour les éliminer complètement.

D. La solution, ayant passé à travers la résine, est concentrée à sec et, après reprise par H_2O, on précipite le phosphore par le réactif molybdique nitrique en milieu acide (CHARLOT 1963). Après agitation et un temps de repos permettant au précipité de bien se déposer, on isole la solution et on insolubilise le béryllium et le strontium par NH_4OH, en présence d'ions CO_3^{--}.

E. Le précipité contient aussi l'aluminium et des résidus d'oxydation qui s'insolubilisent en milieu basique. On extrait l'aluminium et le béryllium par de la soude concentrée; le strontium reste dans le précipité.

On a ainsi séparé les 5 éléments : Po, Pb, P, Be et Sr. Pour la plupart il est encore nécessaire de faire une purification.

REMARQUE : Dans le cas des filtres Arjomari 4004 (prélèvements en avion), afin de récupérer le mieux possible les éléments, on procède à une calcination du résidu (§. A) que l'on reprend ensuite par HNO_3 ; la solution obtenue est jointe à la solution principale pour la suite de l'analyse .

I.3 - Séparation des éléments dans les précipitations

La figure II.2 schématise la méthode de séparation chimique dans le cas des eaux de pluie.

A. Les divers entraîneurs et traceurs radioactifs, à l'exception du strontium inactif, sont ajoutés à l'eau de pluie collectée. On ajoute également 0.70 g de fer, sous forme de $FeCl_3$ (GOEL & RAMA, 1959), et de l'acide nitrique pour amener le P_H à 2. On agite et on laisse reposer au moins 4heures, pour permettre à l'équilibre isotopique de se faire.

B. On précipite alors le fer par NH_4OH. Les différentes activités sont "lessivées" par la précipitation du $Fe(OH)_3$. Le strontium inactif en quantité pondérable ne serait pas entraîné, à cause du produit de solubilité trop élevé de son hydroxyde ; par contre, des traces de Sr (^{85}Sr et ^{90}Sr) le sont par adsorption sur le précipité de $Fe(OH)_3$. Après avoir laissé le précipité floculer et décanter, pendant 12 heures environ, on peut éliminer la solution qui ne contient plus que des quantités négligeables d'éléments à analyser.

C. Le précipité est recueilli sur filtre sans cendres que l'on incinère à 450°C pendant 12 heures. Une température supérieure risquerait de provoquer une volatilisation du polonium (PASCAL 1964). On ajoute ensuite le strontium inactif, qui va servir d'entraîneur, et on passe en milieu HCl (8N). Dans ces conditions (CHARLOT, 1963) seul le Fe^{3+} est extrait dans l'éther et, en répétant l'extraction, on élimine plus de 99% du fer présent qui gênerait la suite de l'analyse.

D. Après concentration, on passe en milieu HCl (0.5 N), en ajoutant du chlorhydrate d'hydrazine qui réduit les ions Fe^{3+} en Fe^{2+}. Il est alors possible de déposer le polonium sur argent, comme on l'a vu précédemment.

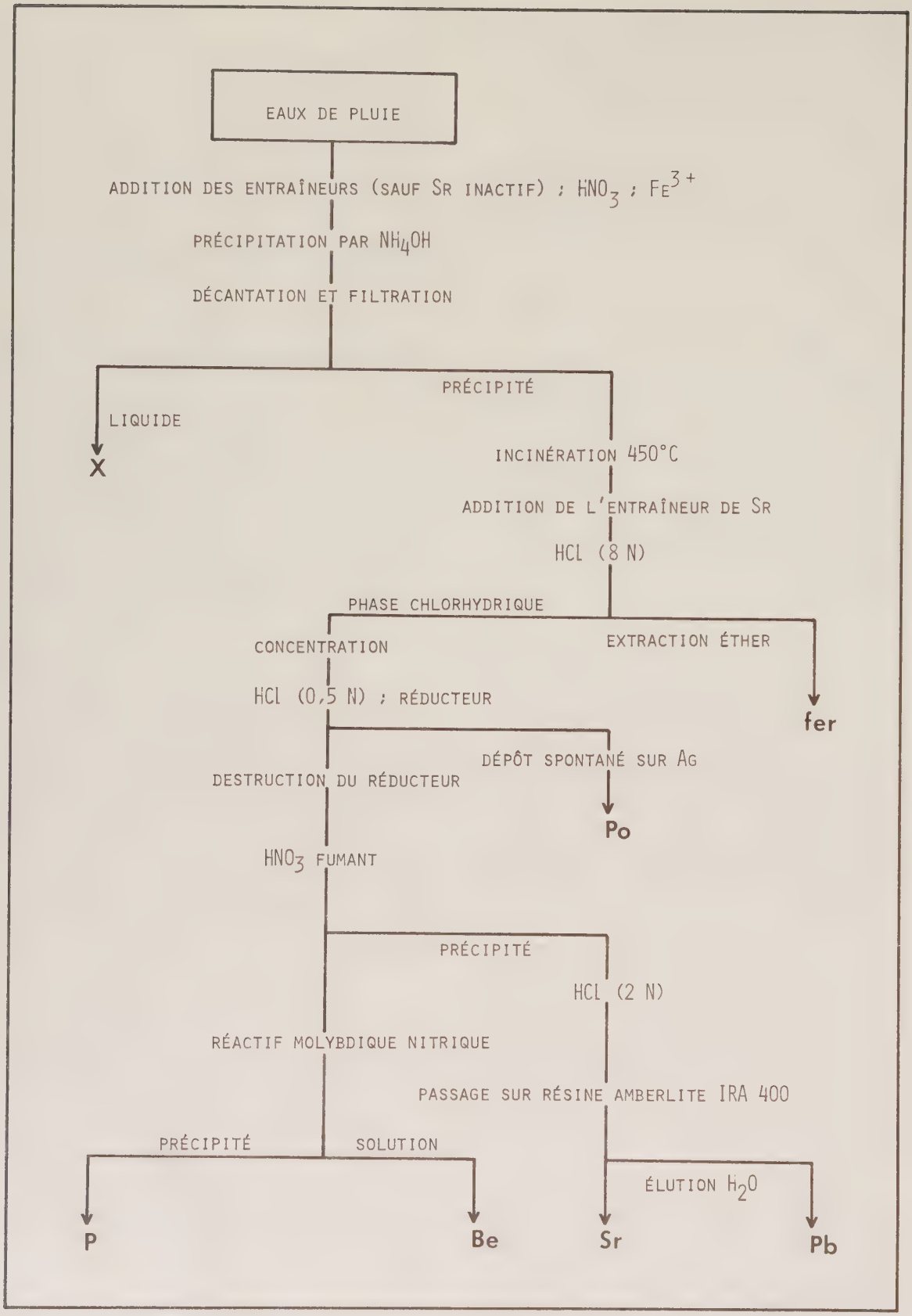

FIGURE II.2 - *Schéma de l'analyse chimique des eaux de pluie.*

E. On insolubilise ensuite le strontium et le plomb dans l'acide nitrique fumant et, après concentration de la solution, on précipite le phosphore par le réactif molybdique-nitrique; le béryllium reste en solution. On le précipite par NH_4OH et on l'extrait ensuite par de la soude concentrée pour le débarasser des dernières traces de fer.

F. Le précipité de nitrate de plomb et de nitrate de strontium est repris par HCl (2N). On les sépare par passage sur résine Amberlite IRA 400. Le plomb est retenu ; le strontium passe.

I.4 - Purification des éléments

A. POLONIUM

En général, la mesure de l'activité du ^{210}Po peut être faite directement par spectrométrie α. Dans le cas où la plaque est attaquée et noircie, on la dissout dans HNO_3 et on évapore à sec (BLACK, 1961). On précipite l'argent par HCl et, après filtration, on redépose le polonium comme précédemment.

B. PLOMB

On élue par H_2O le plomb fixé sur la résine Amberlite IRA 400. On procède alors à une électrolyse, en milieu HNO_3 et nitrate d'ammonium, afin de déposer le plomb à l'anode sous forme de PbO_2. On le redissout dans HCl et on précipite le chromate de plomb, en milieu tampon acétique (P_H : 4 à 5). Après lavage et mise en suspension du précipité dans l'alcool, on le dépose sur une petite plaque de cuivre tarée (gravimétrie).

C. PHOSPHORE

Le précipité de phosphomolybdate est dissout dans NH_4OH (CHARLOT, 1963) et on précipite le phosphate de magnésium et d'ammonium, en présence d'ions citrate (indicateur coloré : bleu de bromothymol). On agite pour accélérer la précipitation du phosphate. Ce dernier est ensuite dissout dans HCl et le phosphore reprécipité comme précédemment. On incinère à 1100°C et on dépose sur plaque de cuivre comme pour le plomb.

D. STRONTIUM

On dissout le précipité de carbonate de strontium et on élimine de la solution les ions CO_3^{--}, en les déplaçant par HCl. On insolubilise alors sélectivement les résidus d'oxydation par NH_4OH, et on précipite le strontium restant en solution par le carbonate de sodium ; on le purifie ensuite par l'acide nitrique fumant et des lessivages successifs, en milieu basique, par le fer et le lanthane. On termine en reprécipitant le strontium par le carbonate de sodium. La mesure de l'activité γ (^{85}Sr) permet de connaître le rendement de l'analyse. Lorsque le ^{90}Y est en équilibre radioactif avec le ^{90}Sr (c'est-à-dire au bout de 25 jours environ), on ajoute l'entraîneur d'yttrium (en quantité connue), on dissout le précipité par HCl, et on chauffe pour accélérer l'échange isotopique. On sépare le strontium en précipitant l'yttrium par NH_4OH et en répétant l'opération. On termine en insolubilisant l'oxalate d'yttrium, en milieu tampon acétique. On le dépose enfin sur une plaque de cuivre comme pour le plomb.

E. BERYLLIUM

Après extraction par la soude, on neutralise et on précipite l'hydroxyde de béryllium par NH_4OH, en présence de Trilon B (sel de l'EDTA). Le béryllium dans ces conditions est seul à s'insolubiliser, ce qui le sépare de l'aluminium (CHARLOT, 1963).

(Dans le cas d'analyse de prélèvements peu importants, ou si l'on est en présence de niveaux d'activités artificielles particulièrement élevés, on peut à ce stade effectuer une purification supplémentaire consistant à extraire, en milieu tampon acétique (P_H : 4-5), le béryllium dans le benzène -sous forme de chélate avec l'acéthyl-acétone, en présence de Trilon B- et à le réextraire ensuite, en milieu acqueux, par HCl (6N)).

On reprend ensuite le précipité de béryllium, ou la solution le contenant, par du $HClO_4$ et on évapore la solution. Après distillation du $HClO_4$, qui détruit éventuellement l'acéthyl-acétone dissoute et élimine -par entrainement des vapeurs- le ruthénium (produit de fission) qui pourrait encore rester, on précipite le phosphate de béryllium et d'ammonium que l'on lave, filtre et incinère à 1100° C .

I.5 - Rendements

Les rendements de récupération sont déterminés par gravimétrie, dans le cas des Pb, Be, P et Y, en comparant le poids de l'échantillon final avec la quantité d'entraîneur ajoutée en début d'analyse. Cependant, étant donné les teneurs souvent importantes de l'air au niveau du sol à Toulouse en plomb et phosphore stables (pollution urbaine et industrielle), dont les quantités collectées sur les filtres augmentent

la proportion d'entraîneurs ajoutés dans l'analyse, j'ai mesuré parallèlement les concentrations dans l'air des plomb et phosphore stables afin de corriger la gravimétrie de ces éléments (on trouvera en Annexe B-2 le détail de ces méthodes d'analyse). D'autre part, le filtre Poëlman-Schneider jaune contenant de petites quantités de phosphates, il y a lieu dans le cas de l'analyse de ces filtres de corriger la gravimétrie du P. La teneur en phosphore, périodiquement contrôlée, s'avère être très uniforme dans les lots de filtres utilisés, et de l'ordre de 48 mlg de P/m^2 de filtre.

La mesure des rendements des Po et Sr est par contre effectuée au moyen des radiotraceurs (^{208}Po, ^{85}Sr), en faisant le rapport entre les activités en fin d'analyse et celles introduites initialement.

II. DETECTION

II.1 - Comptage α

On opère par spectrométrie α pour séparer le ^{208}Po (5.11 Mev) du ^{210}Po (5.30 Mev). Le détecteur est une chambre à grille (Intertechnique SA-40) reliée à un analyseur 400 canaux. Le bruit de fond est pratiquement nul et la résolution meilleure que 0.8 %, ce qui assure une bonne séparation des deux polonium. On obtient les comptages respectifs en intégrant l'aire sous chaque pic.

II.2 - Comptage β

Les comptages β sont réalisés au moyen d'un ensemble à bas bruit de fond (2.5 cpm) (Intertechnique RA-12) à circulation de gaz. Le compteur de mesure (diamètre : 12cm) est placé en anticoïncidence avec un compteur de garde. Ce type de comptage est utilisé pour mesurer les activités des ^{210}Pb (par l'intermédiaire du ^{210}Bi), ^{32}P et ^{90}Y.

II.3 - Comptage γ

Le ^{7}Be et le ^{85}Sr sont comptés par spectrométrie γ, en faisant chaque fois, dans le cas du ^{85}Sr, le spectre de l'étalon correspondant à l'analyse. On utilise une sonde, comportant un cristal puits de NaI (Tl) de 7.5 x 7.5cm reliée à un analyseur 400 canaux. La sonde est placée dans une cellule de forme cubique (1 m^3 de volume), à parois de plomb de 10 cm d'épaisseur. Dans ces conditions, le rendement de comptage est de 50 % pour les ^{7}Be (0.48 Mev) et ^{85}Sr (0.51 Mev), et le bruit de fond sous le pic de 10 cpm.

III. CALCUL DES RESULTATS

On calcule l'activité spécifique de chaque élément : X (Ci/m^3 ou Ci/l), au moyen d'une formule de la forme :

$$X = \frac{K.A_o}{P.r_1.r_2}$$

avec :

K : coefficient de proportionnalité (fonction de l'efficacité du filtre dans le cas des prélèvements d'air)

P : volume d'air ou de pluie

r_1 : rendement chimique de récupération

r_2 : rendement de comptage

A_o : activité "corrigée", ramenée au milieu du prélèvement.

En effet, les temps mis en jeu dans les différentes opérations de prélèvement et de comptage n'étant pas toujours négligeables devant les périodes des éléments, il y a lieu dans certains cas d'effectuer des corrections diverses sur les comptages bruts des échantillons (cf. Annexe C-1).

Les erreurs commises sur les mesures dépendent des différents facteurs entrant dans le calcul des activités (cf. Annexe C-2). Le tableau II.1 présente les erreurs relatives moyennes pour les éléments dans l'air et l'eau de pluie.

Elles varient de 5 à 10 % selon les radionucléides considérés et le milieu analysé.

Elément	Air	Pluie
Po	10 %	8 %
Pb	6.5	5.5
Be	7	5.5
P	8.5	8.5
Sr	10.5	10.5

TABLEAU II.1 - *Erreurs relatives commises sur les déterminations d'activité des éléments.*

IV. CONCLUSION

Comme on peut voir par ce qui précède, la mesure des concentrations des radionucléides étudiés est une chose assez délicate tant au niveau de la collection des éléments qu'à celui de leur séparation et de leur détection.

Une partie importante de mon travail a donc été consacrée à cette phase expérimentale, pour obtenir finalement une somme de résultats, sans doute élevée par rapport aux déterminations réalisées précédemment dans le monde, mais parfois restreinte devant les besoins d'études très détaillées.

Nous allons passer à présent, dans une étude plus théorique, à l'interprétation des résultats de ces mesures et à leur utilisation.

☆ ☆
☆

DEUXIEME PARTIE

ETUDE DES ELEMENTS RADIOACTIFS

CHAPITRE III

ETUDE DES VARIATIONS DES ELEMENTS DANS LA TROPOSPHERE (1)

L'étude des éléments radioactifs en suspension dans l'air a fait progresser de manière appréciable nos connaissances en physique de l'atmosphère et permis, en particulier, d'avoir une vue plus exacte sur les phénomènes de circulation générale, les échanges entre les divers réservoirs atmosphériques et les phénomènes d'élimination.

On a cependant tiré des conclusions parfois hâtives de mesures trop générales ou avancé des hypothèses sans avoir les éléments pour pouvoir les vérifier, et des polémiques diverses se sont engagées. On a par exemple signalé pour le ^{7}Be une variation périodique annuelle, présentant une certaine analogie avec celle obtenue pour les produits de fission ; la plupart des auteurs l'a reliée aux arrivées stratosphériques et en a déduit des pourcentages d'air venant de la stratosphère. On a utilisé les produits de fission pour étudier les échanges stratosphère-troposphère et on a conclu que les transferts étaient principalement discontinus. On a aussi envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'air et corrigé les valeurs des temps de séjour troposphériques obtenus.

La mesure simultanée de 5 éléments d'origines et de périodes différentes, avec des prélèvements continus et de courte durée par rapport à ce qui avait été fait précédemment, permet d'étudier de manière bien plus précise ces différents problèmes et de trancher dans des cas où les diverses hypothèses émises ne pouvaient être vérifiées. J'ai ainsi interprété les variations d'activité, en appliquant en particulier aux résultats expérimentaux des méthodes numériques de traitement (corrélations) et en procédant parallèlement a des expériences de simulation numérique sur modèles. Ces mesures, jointes à celles d'autres auteurs, me permettent ainsi de préciser ou de discuter un certain nombre de conclusions tirées précédemment.

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet de publications dans les revues "Geofisica e Meteorologia" (MARENCO et al., 1967) et "Tellus" (MARENCO & FONTAN, 1974-a).

I. RAPPEL DES TRAVAUX ANTERIEURS

Les éléments que j'ai étudiés sont d'origines diverses. Le ^{90}Sr est un produit de fission à longue période (29 ans). Après les essais nucléaires de grande puissance de 1962, sa concentration moyenne dans l'atmosphère a décru jusqu'en 1967 -malgré diverses explosions françaises et chinoises de faible puissance entre 1964 et 1966-, le contenu de l'hémisphère nord restant toujours supérieur à celui de l'hémisphère sud (figure III.1). A partir de 1967, des explosions chinoises plus importantes (chaque année entre 1967 et 1970) ont périodiquement relevé son niveau d'activité dans l'hémisphère nord, mais ce n'est qu'après 1968 (essais français importants) que les teneurs dans l'hémisphère sud ont rejoint celles de l'hémisphère nord. En dehors des périodes d'explosion récente, il est essentiellement contenu dans la stratosphère qui se comporte comme un réservoir vis-à-vis de la troposphère, où l'on observe une variation périodique annuelle marquée d'activité (maximum de printemps), liée aux échanges stra-

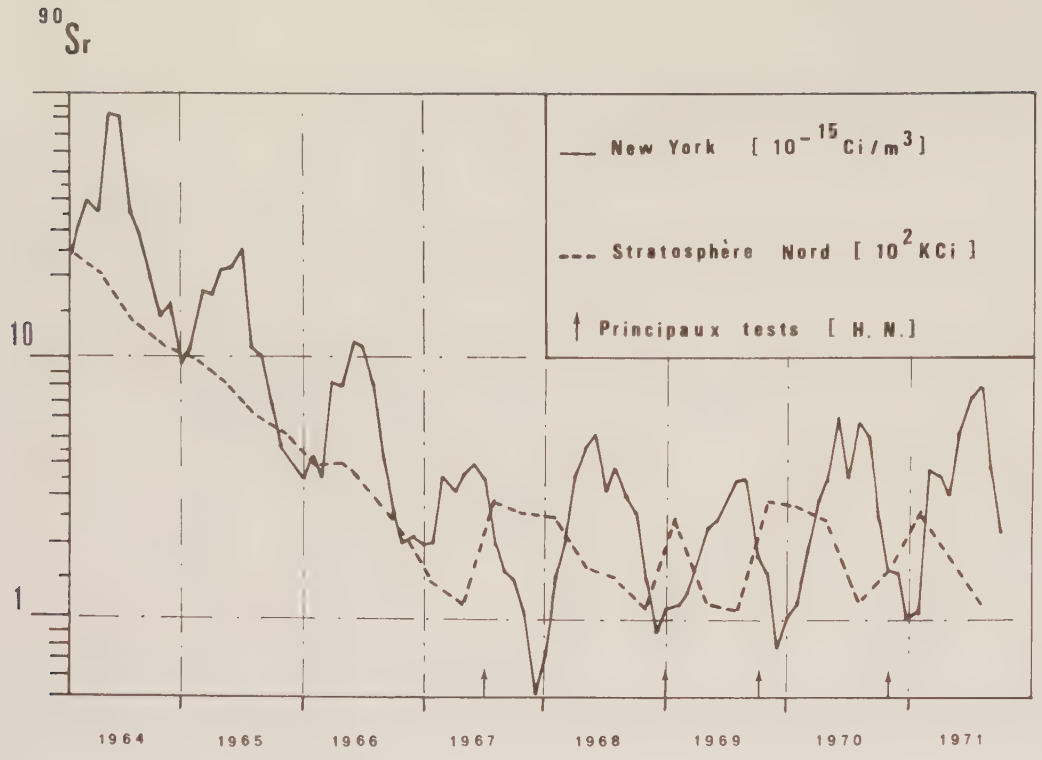

FIGURE III.1 - *Variations du contenu stratosphérique de ^{90}Sr dans l'hémisphère nord (KREY & KRAJEWSKI, 1972) et de sa concentration dans l'air au niveau du sol à New York (HASL, 1972).*

tosphère-troposphère. L'étude des répartitions spatiales dans la stratosphère, et de leur évolution dans le temps, a permis de caractériser les grands traits de la circulation générale dans la stratosphère (MACHTA, 1957 ; KREY, 1967-b) et de mettre en évidence des phénomènes de descente rapide d'air stratosphérique dans la troposphère, aux latitudes moyennes, par des brèches dans la tropopause liées aux courants-jet (DANIELSEN, 1968 ; STALEY, 1960, 1962). LAMBERT (1963), à partir des résultats d'activité (β global) dans l'air au niveau du sol (étude de la fréquence et de l'amplitude des pics), a conclu à la prédominance de ces échanges discontinus dans les transferts entre la stratosphère et la troposphère.

Les ^{7}Be et ^{32}P sont des éléments cosmogéniques à moyenne période (respectivement 53,7 et 14,45j). Leurs taux de production restent dans un rapport constant (60) et augmentent avec la latitude et surtout l'altitude (LAL et al., 1958; PETERS, 1959) (figure III.2). La production stratosphérique - intégrée sur une colonne verticale d'air- varie beaucoup entre l'équateur et les fortes latitudes (où elle devient prédominante dans la production totale),ce qui n'est pas le cas de la production troposphérique, l'augmentation vers les pôles du taux de production étant alors compensée par l'abaissement de la tropopause (figure III.3).

De nombreux auteurs ont signalé l'existence d'une variation périodique de ^{7}Be dans

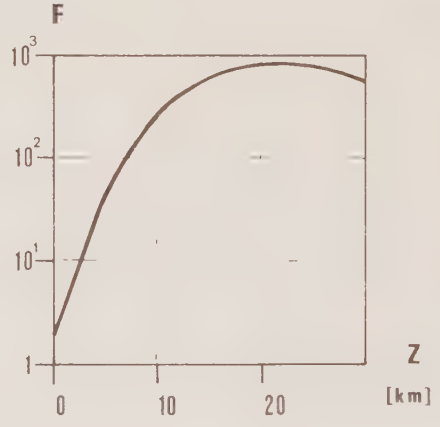

FIGURE III.2 - *Variation du taux d'éclatement nucléaires F avec l'altitude (40°N - d'après LAL, 1958).*

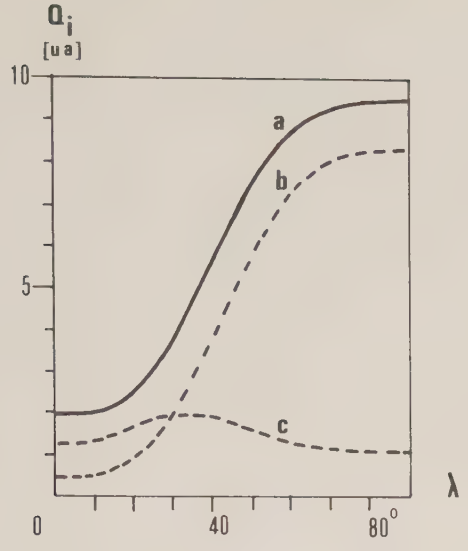

FIGURE III.3 - *Variation en fonction de la latitude du taux de production intégré Q_i (a/ atmosphère totale ; b/ stratosphère ; c/ troposphère) (d'après LAL, 1958).*

l'air au niveau du sol, avec un minimum d'hiver et un maximum vers la fin du printemps et en été (hémisphère Nord), l'amplitude et la position du maximum variant avec la latitude (THOMAS et al., 1970). L'explication de cette variation diffère selon les auteurs mais deux grandes tendances se dégagent. Quelques auteurs sont d'avis que le ^{7}Be, mesuré dans les basses couches, est principalement d'origine troposphérique. Les uns font intervenir des causes purement météorologiques, avec les phénomènes de lessivage par les précipitations (CRUIKSHANK et al., 1956) et la variation des échanges verticaux dans la troposphère (AEGERTHER et al., 1966). Les autres l'expliquent par la variation du taux de production troposphérique, liée au déplacement saisonnier de la tropopause (WALTON et FRIED, 1962). Cependant, la grande majorité des auteurs, tout en reconnaissant la formation importante de ^{7}Be dans la troposphère et l'influence éventuelle des facteurs précédents, attribue l'augmentation de printemps et d'été dans les basses couches aux apports d'air stratosphérique (estimations allant de 20 à 60% pour la contribution en ^{7}Be), dus à l'élévation de la tropopause à cette époque et aux arrivées rapides (GUSTAFSON et al., 1961 ; PARKER, 1962 ; SCHUMANN et STOEPPLER, 1963 ; PEIRSON, 1963 ; BLEICHRODT et ABKOUDE, 1963-b ; NOSKIN, 1969 ; THOMAS et al., 1970 ; GOPALAKRISHNAN, 1970 ; RANGARAJAN et GOPALAKRISHNAN, 1970). Leur raisonnement repose en général sur la similitude de variation au printemps des concentrations moyennes du ^{7}Be et des produits de fission à longue période. Si les déterminations de ^{7}Be sont relativement nombreuses dans l'air, celles de ^{32}P sont par contre bien plus rares et éparses, étant donné les faibles activités à détecter, et rien de caractéristique pour les variations de cet élément n'a encore été mentionné. Il faut signaler également, à côté de la source naturelle, la formation artificielle de ^{7}Be et ^{32}P lors d'essais nucléaires importants (DREVINSKY et al., 1964 ; BLEICHRODT et ABKOUDE, 1963-a ; ALLKOFER et al., 1966). Cependant, étant donné les périodes radioactives relativement courtes des ^{7}Be et ^{32}P et les temps de séjour troposphériques, cette production n'a pas d'effet important ou prolongé dans les basses couches de la troposphère.

Enfin, les ^{210}Pb et ^{210}Po sont les descendants à longue période du radon diffusant du sol dans l'atmosphère.

$$^{222}Rn \xrightarrow[3,8j]{} \{\text{descendants à vie courte}\} \rightarrow {}^{210}Pb \xrightarrow[22a]{} {}^{210}Bi \xrightarrow[5j]{}$$

$$^{210}Po \xrightarrow[138j]{} {}^{206}Pb \ \underline{\text{stable}}$$

Le dégagement du radon est prépondérant sur les continents et négligeable sur les mers, et sa concentration dépend des conditions de stabilité. Elle est en moyenne bien plus élevée dans les basses couches au-dessus des terres (10^{-10} à 10^{-9} Ci/m^3) et décroît rapidement avec l'altitude (fonction exponentielle). La source de radon étant plus importante dans l'hémisphère nord, étant donné l'étendue supérieure des continents, on vérifie que la concentration moyenne du ^{210}Pb y est également supérieure (PATTERSON & LOCKHART, 1964 ; PEIRSON et al., 1966). Les mesures dans l'air de la basse troposphère montrent, en général, l'existence d'une variation périodique caractéristique, avec un maximum de concentration en hiver. Les auteurs l'ont attribué à la variation de la source (radon), fonction des conditions locales de stabilité et de l'origine des masses d'air (PEIRSON et al., 1966 ; JOSHI et al., 1968, 1969, 1971 ; GOPALAKRISHNAN, 1970).

Il est possible d'estimer le taux moyen de dégagement du radon (E), pour la bande de latitude 40-50°N, de diverses manières.

- Estimation directe : D'après ISRAEL (1951) et SERVANT (1964) on peut considérer un taux moyen de dégagement de 0.63 at/cm^2.s sur le continent et négliger celui de la mer. La fraction continentale dans la bande de 40 à 50°N étant de

0.36, on obtient donc : E_{moyen} = 0.23 at/cm^2.s.

- Estimation indirecte : La désintégration du radon donne du ^{210}Pb par l'intermédiaire des descendants à courte période. La mesure du dépôt total du ^{210}Pb (Q) permet donc de connaître le taux de dégagement du radon.

. On peut calculer le dépôt moyen du ^{210}Pb à partir des chiffres donnés dans la littérature :

Continents { 0.7 at/cm^2.s (POET et al., 1972)
{ 0.25 at/cm^2.s (BURTON & STEWART, 1960)

Océans { 0.025 at/cm^2.s (TUREKIAN et al., 1973)

ce qui donne pour la bande de latitude considérée : Q_{moyen} = 0.19 at/cm^2.s

. NEZAMI (1966) a mesuré en France le dépôt total du ^{210}Pb et obtenu une valeur de 0.27 at/cm^2.s (ce chiffre est intermédiaire car il est plutôt représentatif d'un site continental soumis à des influences océaniques).

La moyenne de ces deux estimations conduit à une valeur du taux de dépôt du ^{210}Pb de 0.23 at/cm^2.s, ce qui concorde parfaitement avec l'évaluation directe du taux de dégagement du radon.

Bien que de nombreuses déterminations du ^{210}Po (et du rapport ^{210}Po/^{210}Pb) aient été réalisées dans le monde, on trouve cependant très peu de mesures régulières de cet élément dans l'air. La principale détermination, réalisée par PEIRSON (de 1962 à 1965), indique que le ^{210}Po suit les variations du ^{210}Pb car on ne constate pas de variation caractéristique du rapport ^{210}Po/^{210}Pb, sauf aux printemps 1962 et 1963 où l'on observe une augmentation de ce rapport. PEIRSON, reprenant l'hypothèse de formation artificielle de ^{210}Pb lors des explosions nucléaires de 1962, attribue cette augmentation à des arrivées stratosphériques de ^{210}Po, issu du ^{210}Pb artificiel. Divers auteurs ont ainsi envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'air (sources fossile, tellurique, stratosphérique, artificielle), principalement pour expliquer les différences entre les temps de séjour calculés à partir des rapports ^{210}Bi/^{210}Pb et ^{210}Po/^{210}Pb (MATTSON, 1970 ; MARTELL et POET, 1969, 1970 ; MARTELL, 1970 ; VILENSKIY, 1970 ; POET et al., 1972). Nous verrons dans le chapitre IV qu'il n'en est rien en fait, tout au moins dans le Sud-Ouest de la France, et que le ^{210}Po est bien d'origine naturelle et provient de la désintégration du ^{210}Pb présent dans l'air. FEELY et SEITZ (1970) et KREY (1969) ont, par ailleurs, montré que la formation artificielle de ^{210}Pb, que l'on avait cru mettre en évidence dans la stratosphère, n'était finalement pas confirmée.

En ce qui concerne les répartitions verticales de ces éléments dans l'atmosphère, il existe bien moins de mesures, particulièrement dans la troposphère. On constate que le ^{7}Be, le ^{32}P et le ^{90}Sr surtout sont en concentrations bien plus élevées dans la stratosphère que dans la troposphère, où leurs activités assez variables augmentent en moyenne avec l'altitude. Pour les ^{210}Pb et ^{210}Po, la différence entre les deux zones est bien moins accusée. On observe enfin des rapports d'activité ^{7}Be/^{32}P et ^{210}Po/^{210}Pb souvent proches des valeurs d'équilibre dans la stratosphère (étant donné les temps de séjour importants) et des rapports très variables, mais généralement plus faibles, dans la troposphère.

II. TRAITEMENT DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les mesures continues, réalisées dans l'air au niveau du sol à Toulouse, nous permettent d'étudier les variations des éléments ainsi que leurs relations avec divers paramètres atmosphériques ; d'autre part, les mesures dans les pluies ou obtenues lors des séries d'expériences particulières (avion, montagne...) nous renseignent sur les variations en altitude dans la troposphère. Il faut souligner l'intérêt des prélèvements de courte durée qui permettent d'une part une meilleure définition des conditions météorologiques lors de la collection (masse d'air...), donc la possibilité de traitements statistiques, et d'autre part de réduire les erreurs commises dans le calcul des ^{210}Po et ^{32}P. Rappelons qu'il est nécessaire en effet, pour ces deux éléments, de procéder à des corrections pour tenir compte de la formation de ^{210}Po ou de la décroissance du ^{32}P pendant la durée du prélèvement, en supposant les activités constantes dans l'air pendant tout le prélèvement.

J'ai appliqué aux résultats des méthodes de traitement statistique, en calculant par ordinateur les corrélations existant entre les activités et divers paramètres. Dans le cas de fonctions continues (activités, paramètres météorologiques à valeur numérique), j'ai calculé les coefficients de corrélation linéaire (PANOFSKY, 1968). Par contre, dans le cas de fonctions discontinues, comme celles établies avec les paramètres qualitatifs (nature des masses d'air...), une des seules méthodes applicables est le calcul des courbes de "cross-corrélation". Cette dernière est définie pour deux variables X(t) et Y(t), dépendant du temps, par la relation :

$$P(\theta) = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^{N} X(t) \cdot Y(t+\theta)$$

θ étant le décalage introduit entre les deux variables.

Il est possible, comme dans le cas de la corrélation linéaire, de normaliser les courbes par la variance des deux variables, mais la valeur numérique des coefficients, obtenus dans le cas de fonctions discontinues, est peu représentative et il est plus intéressant de considérer l'existence de pics et leurs décalages éventuels.

J'ai ramené les résultats d'activité à un pas fixe d' une journée, afin d'obtenir des fonctions comparables, et j'ai opéré sur elles des filtrages (filtres passe-haut) pour rester dans le domaine spectral des courtes périodes et ne pas être gêné, dans l'étude des corrélations, par les phénomènes à grande période. Enfin, étant donné les transformations mathématiques effectuées sur les résultats (découpage, filtrage), il en résulte un certain étalement dans les variations d'activité dont l'effet est de diminuer la résolution des pics et d'abaisser la valeur absolue des coefficients de corrélation, ce dont il faut tenir compte dans leurs critères d'estimation.

Afin de pouvoir décomposer les phénomènes souvent complexes et dégager l'influence des divers paramètres, j'ai mis au point des modèles de simulation numérique reposant sur l'équation classique de diffusion et permettant de simuler, en régime stationnaire ou dépendant du temps, les échanges verticaux, les phénomènes de lessivage, le dépôt au sol, la variation de production avec l'altitude... On limite en général, l'étude à une dimension verticale (atmosphère allant jusqu'à 40 km) et l'on considère une zone de lessivage (coefficient Λ_1) comprise entre 2 et 6 km, un coefficient de dépôt β = 0.2 cm/s et une tropopause située à 11 km. J'ai par ailleurs utilisé un profil vertical de coefficient d'échange Kz, tenant compte de la couche limite planétaire (BIROT, 1971) et de la tropopause, avec un coefficient d'échange moyen dans la troposphère variable (de 1 à 20 m^2/s) et un coefficient de l'ordre de 0.4 m^2/s dans la stratosphère. Enfin, j'ai simulé les diverses sources des éléments en considérant, pour les ^{7}Be et ^{32}P, la répartition verticale des taux de production correspondant au 45° de latitude, et pour les ^{90}Sr, ^{210}Pb et ^{210}Po des formations continues ou discontinues selon les modèles envisagés . On trouvera au Chapitre VI des renseignements plus détaillés concernant le principe et la réalisation de ces modèles.

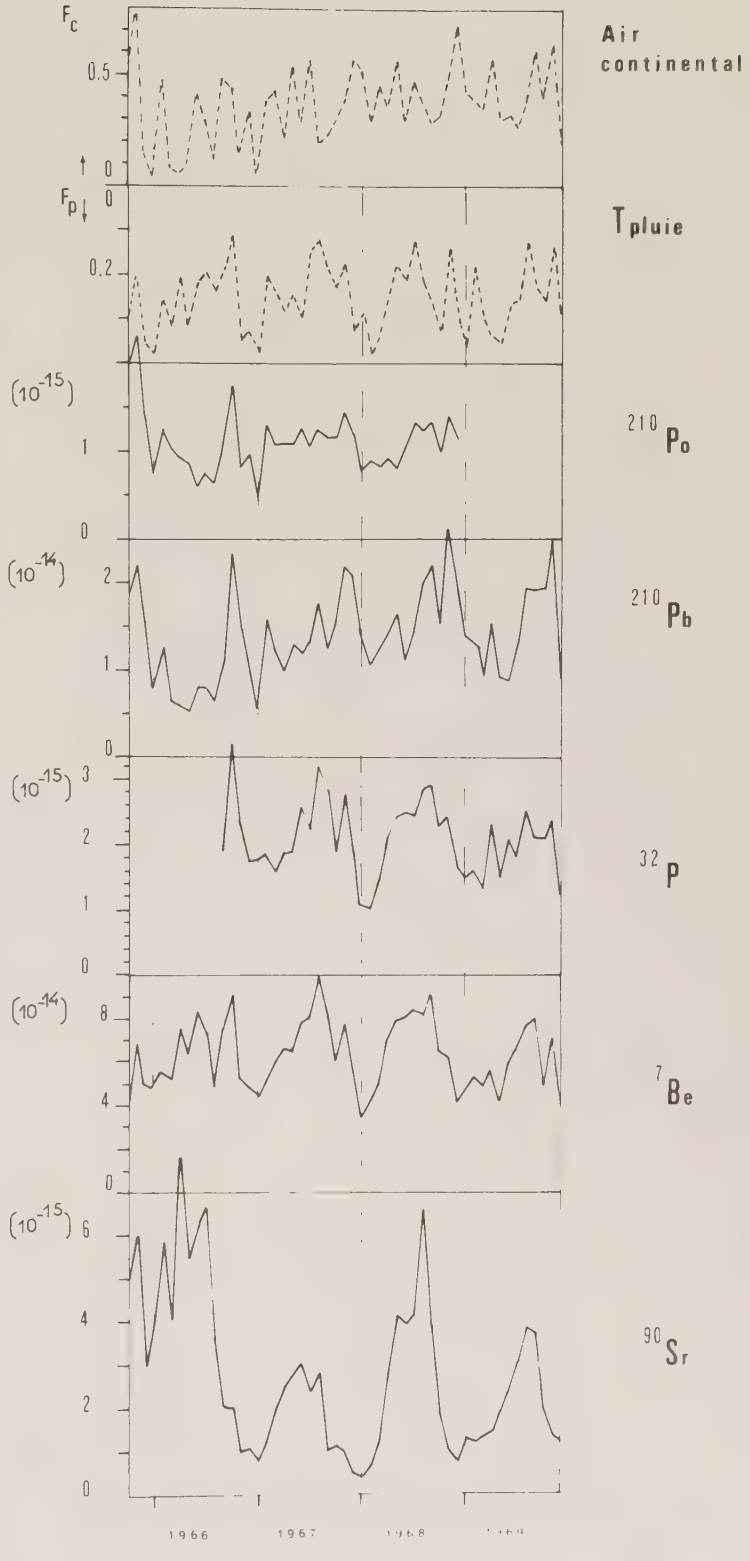

FIGURE III.4 - *Variations, dans l'air au niveau du sol à Toulouse, des activités mensuelles et des fractions mensuelles de temps de pluie (F_p) et d'air continental (F_c).*

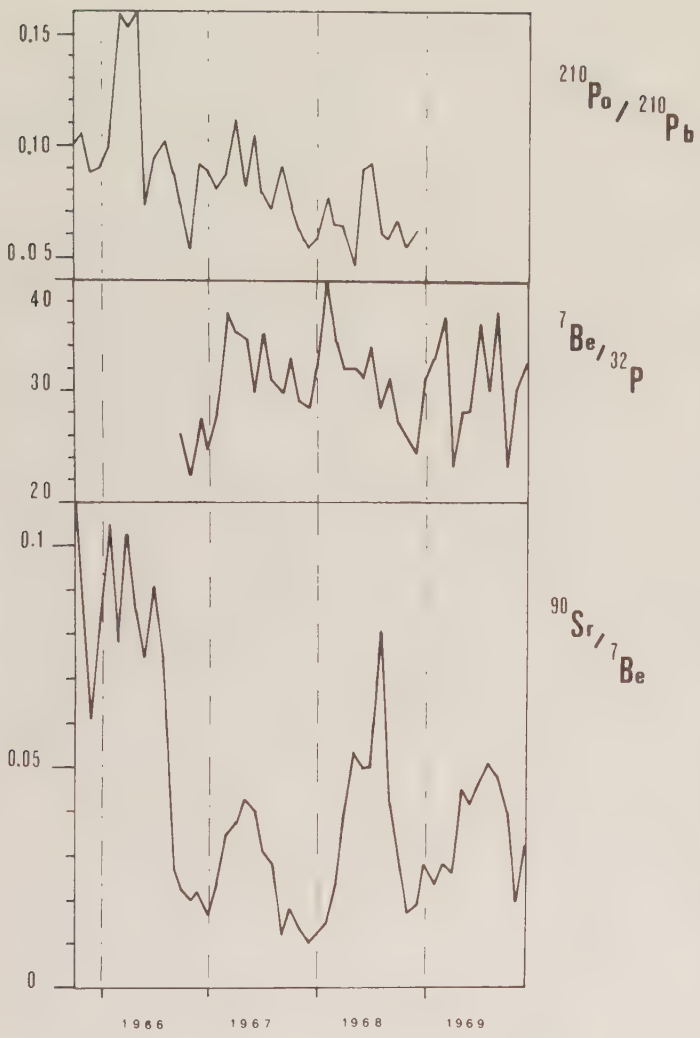

FIGURE III.5 - *Variations des rapports mensuels d'activité dans l'air au niveau du sol à Toulouse.*

III. VARIATIONS DANS L'AIR AU NIVEAU DU SOL

III.1 - Variations mensuelles

A. RESULTATS A TOULOUSE

Les figures III.4 et III.5 présentent les variations mensuelles des activités et rapports d'activité ($^{7}Be/^{32}P$; $^{90}Sr/^{7}Be$; $^{210}Po/^{210}Pb$). J'ai porté, entre Septembre 1965 et Août 1966, les valeurs mensuelles de ^{90}Sr mesurées à Ispra en Italie (HASL, 1966 à 1970), représentatives de celles de Toulouse (résultats pratiquement identiques par la suite).

On constate l'existence de variations périodiques, très marquées dans le cas des ^{90}Sr ^{7}Be et ^{32}P et plus irrégulières pour les ^{210}Po et ^{210}Pb. On retrouve cependant le plus souvent pour tous les éléments sauf le ^{90}Sr, les mêmes irrégularités de variation (pics d'activité concordants) correspondant assez bien à l'inverse du temps de pluie (durée des précipitations à Toulouse).

Les variations moyennes du ^{90}Sr sont très accusées (facteur 15), avec un minimum en hiver (décembre) et un maximum de printemps (mai-juin). Les variations de cet élément, et surtout celles du rapport $^{90}Sr/^{7}Be$, témoignent des arrivées d'air stratosphérique ; on remarque que leur effet dans les basses couches débute dès la fin de l'hiver et augmente progressivement au printemps, ce qui peut traduire, soit que les échanges eux-mêmes augmentent de l'hiver au printemps (liés à l'élévation de la tropopause), soit qu'ils se produisent surtout au début de cette période (liés aux ruptures de tropopause) et que les phénomènes de transport vertical moyen dans la troposphère sont relativement lents.

La variation périodique des ^{7}Be et ^{32}P est bien moins marquée (facteur 2 pour le ^{7}Be et 3 pour le ^{32}P) ; par ailleurs, les fortes valeurs se poursuivent jusqu'en Septembre-Octobre alors que le ^{90}Sr a complètement décru. Le rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ présente également une variation périodique mais différente cependant de celle du rapport $^{90}Sr/^{7}Be$; mis à part quelques irrégularités en 1969, dues à un décalage dans les cycles saisonniers, on observe en général de fortes valeurs en hiver puis une décroissance jusqu'à l'automne.

Enfin les variations des ^{210}Po et ^{210}Pb, périodiques mais différentes de celles des éléments précédents (maximum intervenant à la fin de l'automne en Octobre-Novembre), sont à rapprocher de celle de la fraction d'air continental (fraction mensuelle du temps où l'on observe à Toulouse des masses d'air d'origine continentale), surtout dans le cas du ^{210}Pb qui la suit très bien. Ceci explique que le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$, souvent élevé en hiver, suive assez bien l'inverse de la variation de la fraction d'air continental.

L'étude des corrélations entre les activités et les rapports mensuels confirme que, pour les rapports $^{90}Sr/^{7}Be$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, c'est l'élément dont la source est la plus variable (^{90}Sr et ^{210}Pb) qui impose ses variations. Dans le cas du rapport $^{7}Be/^{32}P$ la relation étroite existant avec l'inverse du ^{32}P peut provenir de la variabilité plus grande de cet élément, en raison de sa période plus courte.

En résumé, on pourrait croire, sur le simple examen des variations périodiques d'acti-

vité plus ou moins en phase, que les augmentations des ^{7}Be et ^{32}P au printemps et en été sont dues à des apports stratosphériques. En fait, trois constations s'opposent à une telle conclusion :

- la différence dans les variations périodiques (existence de fortes valeurs de ^{7}Be et ^{32}P alors que le ^{90}Sr a complètement décru) ;
- l'amplitude de variation du ^{32}P supérieure à celle du ^{7}Be (en effet une introduction stratosphérique ne peut qu'amener relativement plus de ^{7}Be que de ^{32}P) ;
- la variation du $^{7}Be/^{32}P$ sans relation avec celle du $^{90}Sr/^{7}Be$ caractéristique des apports stratosphériques.

Il est donc délicat de tirer une conclusion sur les apports stratosphériques avec le seul examen des variations mensuelles d'activité.

En ce qui concerne les ^{210}Po et ^{210}Pb, on ne retrouve pas de variation périodique aussi nette que celles mesurées par les auteurs cités précédemment, ni de maximum important en hiver. Il semble qu'interviennent surtout les phénomènes de lessivage et l'origine de la masse d'air.

B. COMPARAISON AVEC D'AUTRES STATIONS

Il est intéressant de comparer les résultats moyens obtenus à Toulouse avec ceux de divers auteurs durant la même période. On constate que sur un même parallèle, les variations périodiques de ^{90}Sr sont très semblables ; mais, si les activités sont toujours très voisines pour les différentes stations continentales (HASL, 1972) (Toulouse ; Ispra en Italie ; New-York et Sterling aux U.S.A.), la variation est moins accusée pour les stations océaniques (Charlie ; Delta) (figure III.6). On observe ainsi en hiver des activités équivalentes dans toutes les stations, alors qu'en été les activités des stations océaniques sont 2 à 3 fois plus faibles.

Ce résultat qui s'oppose à certaines constatations, indiquant des activités plus fortes au-dessus des océans (BA CUONG NGUYEN,

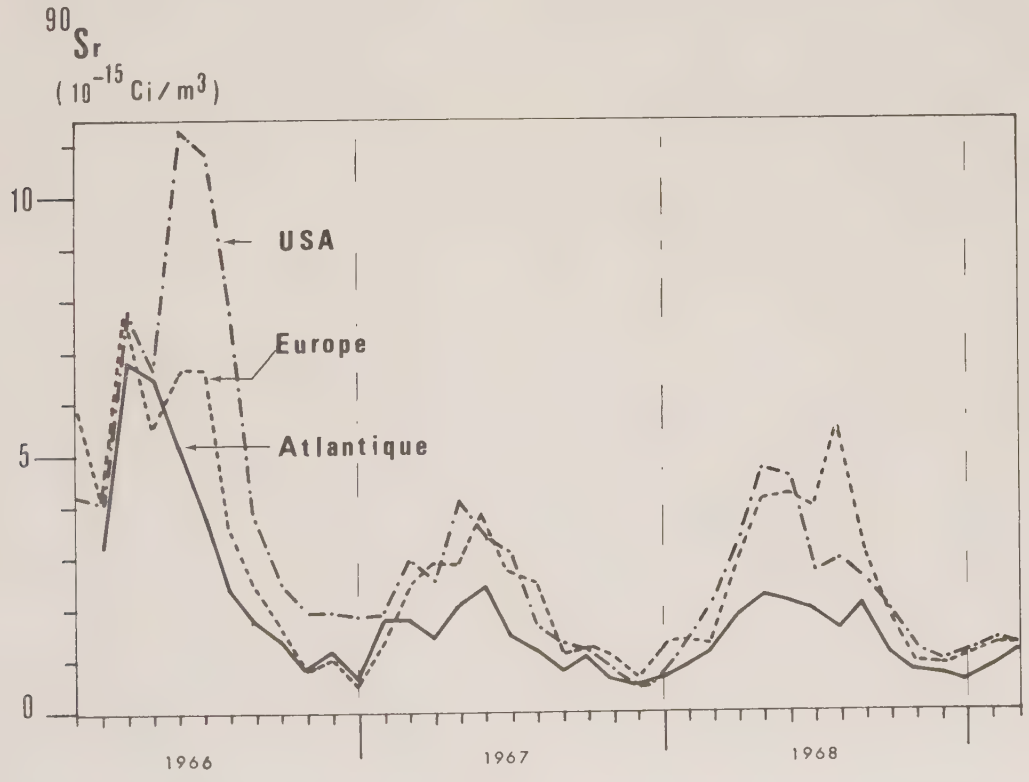

FIGURE III.6 - *Variations, dans l'air au niveau du sol, des concentrations de ^{90}Sr :*

- U.S.A. (moyenne des stations "Sterling, Virginia" et "New York") (d'après HASL, 1972) ;

- Atlantique (moyenne des stations "Charlie Ocean Station" et "Delta Ocean Station")(d'après HASL, 1972) ;

- Europe (moyenne de Toulouse et Ispra) (d'après HASL-1).

1971), se répète chaque année de mesure. Il serait possible de l'attribuer à des phénomènes de lessivage (ou de dépôt) plus importants au-dessus des océans (pluies, embruns) ; cependant le fait qu'en hiver on trouve à peu près les mêmes concentrations dans les stations océaniques et continentales montre que la différence est plutôt due à un phénomène saisonnier. L'hypothèse de descentes stratosphériques, plus importantes au-dessus des continents que des océans, semble très improbable. Il est par contre possible d'expliquer ces différences par le blocage en été, au-dessus des océans, des produits arrivant des couches supérieures de la troposphère, à cause de l'inversion de température présente à cette époque au-dessus de la mer (BYERS, 1959). Ce phénomène de blocage est atténué ou détruit au-dessus des continents du fait de la turbulence thermique.

En ce qui concerne le ^{7}Be, les mesures effectuées à Brunswick (51°N), en Allemagne (figure III.7), (KOLB, 1970) montrent des activités en général voisines de celles obtenues à Toulouse entre 1965 et 1969. Ceci prouve que les variations moyennes de cet élément sont dues à des phénomènes à moyenne ou grande échelle, plutôt qu'à des phénomènes locaux.

Les mesures effectuées à Moissac en 1965 et 1966, parallèlement à celles de Toulouse (distant de 65 km), confirment l'homogénéité des masses d'air à l'échelle synoptique et la représentativité des mesures effectuées en un seul point (tableau III.1). On obtient ainsi dans les deux stations des résultats très voisins dont la différence relative (moyenne statistique) est inférieure ou égale à l'erreur commise sur la détermination des éléments (cf. Chapitre II).

	Valeur moyenne		Ecart	Ecart relatif (moy. statis.)
	Toulouse	Moissac		
^{210}Po	0.088	0.090	2 %	7 %
^{210}Pb	0.72	0.69	4	7
^{7}Be	7.05	7.04	1	5

TABLEAU III.1 - *Comparaison des résultats obtenus à Toulouse et Moissac (distants de 65 km) en 1965 et 1966 (étude sur 22 prélèvements dans chaque station) (activités en 10^{-14} Ci/m^3).*

Les valeurs moyennes sur la période considérée sont pratiquement identiques, et aucune tendance particulière ne se dégage entre les deux points de mesure, si ce n'est peut-être une valeur un peu plus élevée pour le ^{210}Pb à Toulouse (ainsi aussi que des résultats individuels un peu plus dispersés) que l'on peut attribuer à la position plus continentale de cette station.

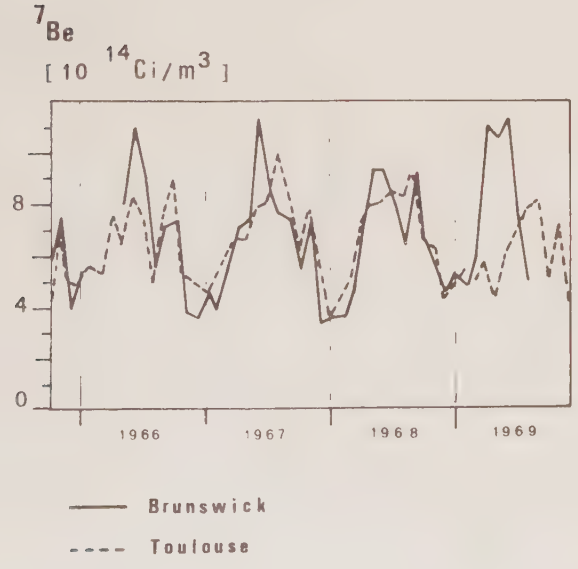

FIGURE III.7 - *Comparaison des variations mensuelles de ^{7}Be à Toulouse (43°N) et Brunswick (51°N) (KOLB, 1970).*

III.2 - Etudes de corrélation

Les mesures fines, réalisées dans l'air au niveau du sol à Toulouse, nous permettent d'étudier les relations existant entre les activités et divers paramètres, au moyen des diagrammes de cross-corrélation. Pour les paramètres qualitatifs, comme la nature des masses d'air, on établit une fonction créneau -prenant la valeur 1 les jours où se produit le phénomène et nulle le reste du temps-, d'après les résultats d'analyses journalières des cartes météorologiques synoptiques. On met en évidence l'existence d'une corrélation (positive ou négative) par la présence d'un pic caractérisé dans la courbe de cross-corrélation, la qualité de la corrélation étant fonction de la définition du pic par rapport aux fluctuations de la courbe.

A. ACTIVITES

On constate que les éléments sont tous bien corrélés entre eux , mais à des degrés divers ; la figure III.8 présente un exemple de

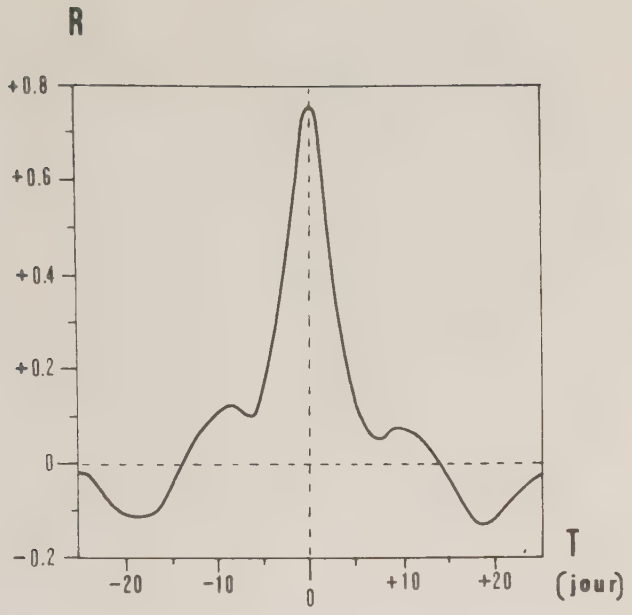

FIGURE III.8 - *Diagramme de "cross-corrélation" en fonction du temps entre les ^{7}Be et ^{32}P.*

courbe dans le cas de la cross-corrélation " ^{7}Be - ^{32}P " . Le tableau III.2 donne les coefficients de stricte corrélation pour un retard nul ; il est toutefois plus significatif de considérer l'ordre relatif des coefficients, plutôt que leurs valeurs absolues qui sont abaissées par les transformations mathématiques (particulièrement dans le cas des corrélations entre les activités et les autres paramètres).

L'existence de corrélations nettes entre tous les éléments signifie que leurs variations dépendent vraisemblablement de même phénomènes, cependant que les divers degrés obtenus montrent bien l'influence des sources :

- corrélation minimale entre les éléments de même origine (^{7}Be et ^{32}P) ou (^{210}Po et ^{210}Pb) ;
- corrélation minimale entre les éléments de sources très différentes (^{90}Sr et ^{210}Po) et surtout (^{90}Sr et ^{210}Pb) ; les ^{7}Be et ^{32}P, dont la source est plus répartie dans l'atmosphère, ayant avec les autres éléments des corrélations intermédiaires.

B. RAPPORTS D'ACTIVITE

Les relations existant avec les principaux rapports d'activité correspondent aux résultats obtenus avec les valeurs mensuelles moyennes :

- $^{90}Sr/^{7}Be$ très bien corrélé avec le ^{90}Sr et anticorrélé avec les ^{7}Be et ^{32}P ;
- $^{7}Be/^{32}P$ très bien anticorrélé avec le ^{32}P mais pas du tout relié au ^{7}Be ;
- $^{210}Po/^{210}Pb$ bien corrélé avec le ^{210}Po et très bien anticorrélé avec le ^{210}Pb ;
- $^{90}Sr/^{7}Be$ et $^{7}Be/^{32}P$ pas du tout reliés.

Ces résultats confirment bien que les variations des ^{7}Be et ^{32}P ne sont pas du tout reliées aux arrivées stratosphériques, puisque ni leurs activités ni leur rapport ne sont corrélés avec le rapport $^{90}Sr/^{7}Be$.

C. PHENOMENES DE LESSIVAGE

On obtient des anticorrélations accentuées entre les activités et les paramètres indicatifs des phénomènes de lessivage, l'indice de pluie représentatif des jours de pluies (tableau III.2) donnant en l'occurence les relations les plus nettes. La hauteur de pluie n'est pas en effet un paramètre très représentatif du lessivage, car elle peut varier de manière considérable selon le lieu et le type de précipitation (on obtient ainsi en été à nos latitudes des pluies importantes provenant de cumulonimbus isolés). L'indice de pluie, par contre, est une meilleure approximation de la présence et de l'importance des perturbations.

^{90}Sr	^{7}Be	^{32}P	^{210}Po	^{210}Pb	
- 0.14	- 0.23	- 0.18	- 0.20	- 0.30	indice de pluie
	+ 0.46	+ 0.33	+ 0.17	+ 0.14	^{90}Sr
		+ 0.76	+ 0.36	+ 0.44	^{7}Be
			+ 0.37	+ 0.38	^{32}P
				+ 0.55	^{210}Po

TABLEAU III.2 : *Coefficients de stricte corrélation linéaire entre les activités et [illegible] de pluie.*

On constate que la relation la plus accusée est obtenue pour le ^{210}Pb. En effet à Toulouse les phénomènes de lessivage sont généralement associés aux perturbations océaniques, ce qui se traduit de différentes manières sur le ^{210}Pb :

1. abaissement de l'activité par lessivage (de la même façon pour tous les éléments) ;
2. abaissement de la concentration moyenne liée à l'origine océanique de l'air ;
3. abaissement éventuel du taux de dégagement du radon (terrains mouillés) se traduisant par la diminution dans les basses couches du ^{210}Pb d'origine continentale récente.

Les rapports d'activité sont, eux, indépendants des phénomènes de lessivage, sauf ceux comportant le ^{210}Pb, car les effets 2. et 3. particuliers au ^{210}Pb se font alors sentir.

Les relations du même genre existant avec la présence de fronts (chaud, froid) et de dépressions (associés en général aux perturbations) confirment les résultats précédents. Cependant, dans le cas de fronts froids, l'anticorrélation entre ceux-ci et les activités diminue pour les ^{7}Be et ^{32}P et disparaît avec le ^{90}Sr. L'explication peut résider dans l'existence de phénomènes de descentes stratosphériques le long des fronts froids (DANIELSEN, 1968 ; DOURY et BOURGEON, 1966), ou de phénomènes de subsidence, ayant un effet contraire (augmentation des activités) à celui des phénomènes de lessivage. Toutefois, l'absence de relation, entre la présence des fronts froids et les rapports $^{90}Sr/^{7}Be$ ou $^{7}Be/^{32}P$, montre que ces effets ne sont pas systématiques. On met enfin en évidence, dans le cas de pluies d'orages (cf. chapitre IV), l'existence d'un effet particulier sur le ^{210}Po (augmentation des activités dans l'air) mais celui-ci reste négligeable dans le bilan général.

On peut voir, en résumé, que les phénomènes de lessivage déterminent de manière très importante les variations d'activité dans l'air au niveau du sol pour tous les éléments ; ceci explique que, malgré des sources très différentes, ceux-ci soient relativement bien corrélés entre eux.

D. MASSES D'AIR

Les relations existant entre les activités et la nature ou l'origine des masses d'air traduisent en fait l'influence des phénomènes de lessivage ou la variation des sources.

C'est ainsi que les masses d'air plus lessivées (air polaire ou arctique; air océanique ; masses d'air dépressionnaires) sont anticorrélées avec les activités et qu'inversement les masses d'air peu lessivées (air continental ; air anticyclonique) leur sont assez bien reliées.

Dans le cas du ^{210}Pb, les relations sont encore plus accusées (air polaire ; air continental ou océanique) du fait de la variation de la source de radon (faible sur les terrains gelés ou sur les océans ; forte sur les continents).

Les rapports d'activité ne sont pas en général reliés à ces différentes masses d'air, car ils éliminent l'influence des phénomènes de lessivage ; cependant, dans le cas où la source varie (cas du ^{210}Pb) ou de celui d'une différence de périodes entre les éléments (cas des éléments cosmogéniques), on observe une relation avec certaines masses d'air. On constate ainsi que le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ est très bien corrélé avec les masses d'air d'origine maritime, et que le rapport $^{7}Be/^{32}P$ est assez bien relié aux masses d'air polaires (ou arctiques), ce qui peut provenir -comme nous le verrons dans le chapitre V- de phénomènes de stabilité verticale de l'air ou de subsidences.

Enfin, on ne met pas en évidence de relation nette entre les activités des éléments, ou leurs rapports, et des paramètres indicatifs des descentes stratosphériques (dédoublement de tropopause, altitudes de tropopauses, indice cyclonique, présente de jet, passage de fronts froids...).

III.3 - Discussion

Ces divers résultats nous permettent de tirer des conclusions plus sûres que celles tirées des seules études de variations moyennes. Les variations rapides et accentuées des activités, en phase en général pour tous les éléments, sont dues en grande partie à l'influence des phénomènes de lessivage, ce qui explique les corrélations existant entre les éléments malgré leurs origines différentes.

Dans le cas des ^{90}Sr et ^{210}Pb, les sources sont localisées et susceptibles de changements importants, et l'on observe dans l'air au niveau du sol la variation de la source (petite ou grande échelle) modulée par les phénomènes de lessivage. Les variations des ^{7}Be et ^{32}P ne sont pas dues, ni en valeur moyenne ni en valeur individuelle, à des contributions stratosphériques ; la source principale de ces éléments,dans l'air des basses couches, est bien la troposphère, et elle varie bien moins dans le temps que celles des ^{90}Sr et ^{210}Pb. Les variations des ^{7}Be et ^{32}P sont donc dues essentiellement aux phénomènes de lessivage. Lorsque

l'on désire s'affranchir le mieux possible de ces phénomènes dans l'étude d'un élément, il est ainsi particulièrement intéressant de considérer le rapport entre cet élément et le ^{7}Be (ou le ^{32}P).

Le rapport $^{90}Sr/^{7}Be$ permet de caractériser l'air venant de la stratosphère. Le fait que l'on ne mette pas en évidence de relation avec les possibilités de descentes d'air stratosphérique (sauf peut-être l'atténuation de certains phénomènes) montre que les pics d'activité, enregistrés dans les basses couches pour le ^{90}Sr, ne sont pas dus en général à des phénomènes discontinus d'apport rapide et récent d'air stratosphérique, mais plutôt à l'influence des phénomènes de lessivage et de circulation horizontale (période de rotation de 10 jours). Mes résultats ne permettent pas d'atteindre la nature même des transferts entre la stratosphère et la troposphère (massifs ou progressifs lors de l'élévation de la tropopause au printemps, discontinus...). Cependant, leur effet dans les basses couches ne se faisant sentir que progressivement, on peut penser que, si les processus de transfert sont discontinus, ils restent limités à la troposphère supérieure et que le temps de transit entre les hautes et basses couches doit être suffisammentlong pour permettre à ces apports stratosphériques de diffuser dans la troposphère avant d'arriver au niveau du sol.

Les résultats confirment, d'autre part, l'importance de la source continentale dans le cas du ^{210}Pb. Le ^{210}Pb mesuré à Toulouse (situé à 300 km de la mer) est en pratique la somme de deux composantes : une composante à grande échelle, variant avec l'origine moyenne de la masse d'air, et une composante locale dépendant fortement des conditions régionales (vitesse du vent, pluie, stabilité...). On observe ainsi une très bonne corrélation entre l'activité du ^{210}Pb et les phénomènes de brume ou brouillard (à un degré moindre pour le ^{210}Po), alors que les ^{7}Be et ^{32}P présentent une certaine anticorrélation. Ce phénomène correspond vraisemblablement à Toulouse à des masses d'air stagnantes très continentalisées, dans lesquelles les échanges verticaux moyens sont plus faibles. Cela explique que les éléments formés dans les basses couches soient corrélés (d'autant plus que l'air est plus continental) et ceux venant du haut anticorrélés. Il n'apparait pas dans le cas du ^{90}Sr de phénomène semblable, à cause de la prépondérance des autres causes de variation de cet élément. Le cas du ^{210}Po est intermédiaire, car sa formation à partir du ^{210}Pb est relativement lente par rapport àcelle du ^{210}Pb à partir du radon ; sa production intègre donc, sur une certaine échelle du temps, les variations de ^{210}Pb dont les changements rapides se font moins sentir. Le ^{210}Po suit donc plutôt les variations à grande échelle du ^{210}Pb, et moins ses variations locales (sauf dans le cas d'effets locaux très importants et prolongés). On vérifie ainsi expérimentalement que le ^{210}Po présente :

- avec les phénomènes de lessivage ou l'origine zonale de la masse d'air, des relations comparables à celles du ^{7}Be ;
- avec l'air arctique (source moyenne du ^{210}Pb plus faible), une anticorrélation intermédiaire entre celle du ^{7}Be et celle du ^{210}Pb , et qu'il est en règle générale mieux corrélé que les autres éléments avec le ^{210}Pb.

Afin de faire la part entre les phénomènes de lessivage et le changement de production troposphérique des ^{7}Be et ^{32}P (lié au déplacement saisonnier de la tropopause), j'ai étudié les variations de ces éléments dans l'air par simulation numérique sur modèle en régime dépendant du temps. J'ai choisi des conditions moyennes d'échange (Kz troposphérique : 5 m^2/s) et représenté la troposphère en tenant compte de sa limite supérieure, d'après les hauteurs journalières de tropopauses relevées sur les radiosondages de Bordeaux (à 300 km de Toulouse) que j'ai considérées comme représentatives des variations à grande échelle (45°N). J'ai introduit le lessivage sous la forme d'un coefficient journalier Λ_1 (dans la couche de 2 à 6 km), fonction de la moyenne glissante et retardée de l'indice de pluie (sur les 15 jours précédents étant donné la rotation des masses d'air). J'ai ainsi simulé la succession dans le temps des phénomènes de production et d'élimination et calculé, entre 1965 et 1969, les moyennes mensuelles d'activité dans l'air au niveau du sol, à partir des concentrations théoriques journalières données par les modèles. On constate que les variations théoriques mensuelles, obtenues dans l'air des basses couches, correspondent très bien à celles de l'indice de pluie mais assez peu à celles de hauteur de tropopause ; si l'on effectue la même simulation, mais sans faire varier la hauteur de tropopause, on obtient dans les basses couches pratiquement les mêmes courbes que précédemment. Ce n'est plus le cas lorsque l'on s'élève en altitude, et la variation de production -liée à la hauteur de tropopause- se fait sentir très nettement dans les hautes couches de la troposphère. Les variations

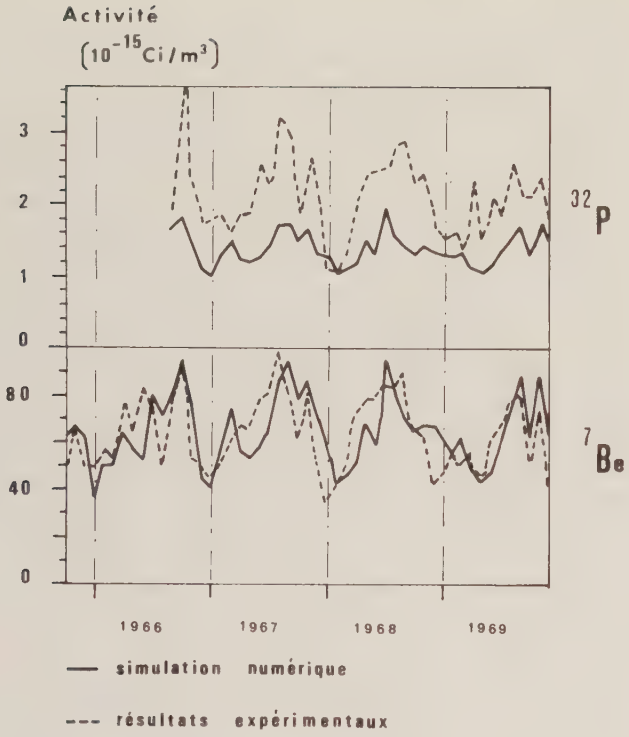

FIGURE III.9 - *Comparaison des variations d'activité mensuelles, expérimentales et théoriques (simulation sur modèle de la variation des phénomènes de lessivage et de la production troposphérique ; K_z troposphérique : 5 m^2/s).*

d'activité des ^7Be et ^{32}P dans les basses couches dépendent donc essentiellement des phénomènes de lessivage.

On retrouve, au niveau du sol (figure III.9), des variations périodiques très comparables à celles enregistrées expérimentalement ; l'accord est très bon à tout point de vue pour le ^7Be, mais il n'est que qualitatif pour le ^{32}P, car ni l'amplitude de variation, ni les niveaux d'activité (trop faibles), ne correspondent pour cet élément. Le rapport d'activité $^7Be/^{32}P$ calculé ne varie que très peu et présente une valeur moyenne trop élevée. Cette étude montre que les phénomènes de lessivage ne sont pas les seuls à intervenir ; nous n'avons, en particulier, pas encore fait intervenir la variation des conditions d'échanges verticaux.

IV - VARIATIONS AVEC L'ALTITUDE

Les modèles que j'ai utilisés sont un moyen commode pour simuler les phénomènes, mais je suis bien conscient qu'il s'agit là d'une simplification, les processus intervenant dans l'atmosphère étant en réalité bien plus complexes. Cependant, les résultats obtenus donnent

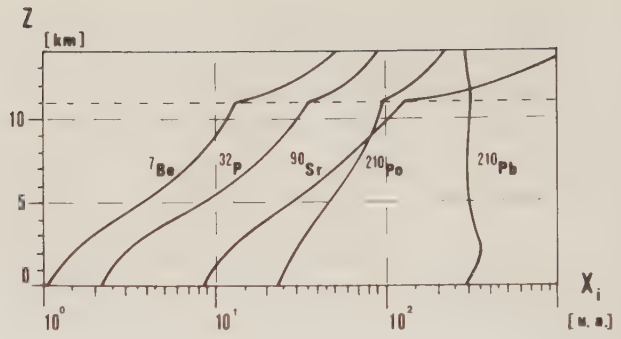

FIGURE III.10 - *Simulation sur modèles (K_z troposphérique : 6 m^2/s ; Λ_l : 1/30 j^{-1}). Répartition verticale des activités dans l'atmosphère.*

une représentation de ce qui se passe en moyenne et permettent de dégager l'influence respective des divers phénomènes. Lorsque l'on étudie sur modèle, en régime stationnaire, la distribution dans l'atmosphère des différents éléments pour des conditions moyennes d'échange et de lessivage (figure III.10), on obtient des répartitions verticales qui augmentent avec l'altitude, sauf dans le cas du ^{210}Pb. Dans la troposphère, le rapport $^{90}Sr/^7Be$ varie très peu, alors que le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ augmente et le rapport $^7Be/^{32}P$ diminue avec l'altitude (figure III.11).

Les mesures expérimentales dans l'air (Pic du Midi et Tarbes ; prélèvements en avion) montrent, qu'en pratique, les conditions réel-

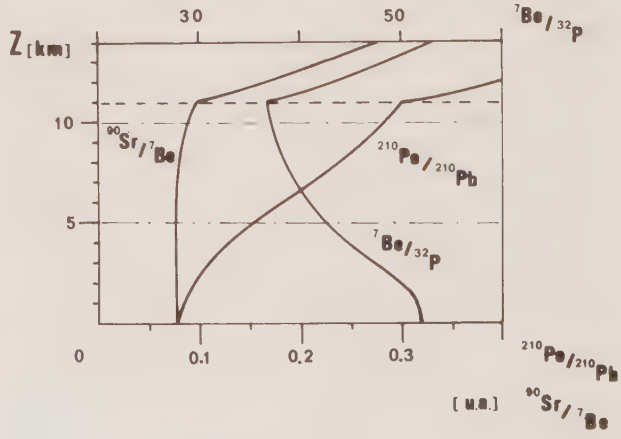

FIGURE III.11 - *Simulation sur modèles (K_z troposphérique : 6 m^2/s ; Λ_l : 1/30 j^{-1}). Répartition verticale des rapports d'activité dans l'atmosphère.*

les s'éloignent souvent du régime stationnaire et que les profils obtenus sont assez irréguliers (cf. Annexes A.2 et A.4).

Chaque cas, correspondant à des conditions expérimentales différentes, requiert en fait une analyse particulière, et il n'est pas possible de comparer directement les profils individuels avec les courbes théoriques. On constate cependant que les basses couches (0-2 km) sont relativement mieux mélangées (couche limite) et l'on observe fréquemment, dans la zone de lessivage (2 à 6 km), des baisses importantes d'activité.

IV.1 - Mesures dans l'air

A. ACTIVITES

Afin de pouvoir comparer les résultats expérimentaux avec les courbes théoriques, j'ai établi pour chaque élément (sauf le ^{210}Po, car les résultats sont trop peu nombreux et trop incertains) un profil expérimental moyen, à partir de l'ensemble des résultats obtenus lors des expériences en avion. Ces profils ne veulent en aucun cas représenter les répartitions verticales moyennes générales, étant donné le trop petit nombre de résultats. Ils permettent simplement de régulariser les variations particulières des courbes et de voir l'allure moyenne des répartitions verticales, lors des périodes de prélèvement.

La figure III.12 présente les profils moyens établis pour les ^{90}Sr, ^{7}Be, ^{32}P et ^{210}Pb.

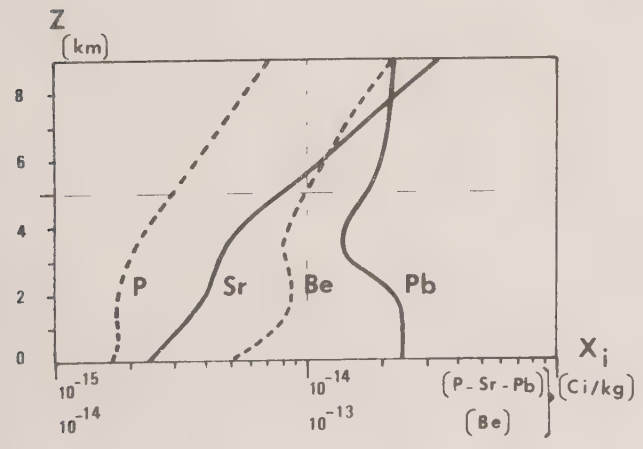

FIGURE III.12 - *Profils expérimentaux moyens de répartition verticale des activités dans la troposphère (résultats moyens des prélèvements en avion).*

On constate que l'allure générale des courbes expérimentales cadre assez bien avec celle des courbes théoriques (figure III.10). Cependant, si l'on compare les profils expérimentaux moyens avec les courbes théoriques obtenues dans différentes conditions d'échange vertical (K_z) et de lessivage (τ_1), on constate qu'il est pratiquement impossible de déterminer ces paramètres. La figure III.13 présente ainsi les diverses courbes pour chaque élément ; dans le cas du ^{90}Sr, chaque profil a été normalisé par rapport à la valeur moyenne du profil expérimental. On remarque que :

- le ^{90}Sr correspondrait assez bien à : K_z = 10 m^2/s et τ_1 = 10 j ou K_z = 6 m^2/s et τ_1 = 40 j ;
- les ^{7}Be et ^{32}P correspondraient relativement, dans les basses couches, à : K_z = 6 à 10 m^2/s et τ_1 = 10 j ou K_z = 3 m^2/s et τ_1 = 40 j, mais que dans les couches moyennes ou supérieures les valeurs expérimentales sont très inférieures aux valeurs théoriques ;
- enfin, le ^{210}Pb s'accorde plutôt avec des valeurs élevées de τ_1. La forme elle-même du profil expérimental est peu significative, car les masses d'air à Toulouse sont en général d'origine maritime, et les basses couches sont bien moins chargées en radon et en ^{210}Pb que dans le cas d'un dégagement constant (courbes théoriques). Aussi est-il plus significatif de considérer les valeurs dans les hautes couches. Les profils théoriques correspondent à un taux de dégagement constant de 0.23 at/cm^2.s de radon, valable pour la bande de latitude de 40 à 50°N. On constate que seules les valeurs élevées de τ_1 (supérieures à 30 j) permettent de retrouver les valeurs expérimentales dans les hautes couches.

Il est donc très délicat de tirer des conclusions précises sur les valeurs des paramètres à partir des profils moyens, compte-tenu du petit nombre de résultats et du fait que l'on peut souvent obtenir des profils théoriques très voisins avec des combinaisons différentes des coefficients d'échange et de lessivage.

Les mesures réalisées au Pic du Midi et à Tarbes donnent également une allure des profils de répartition verticale dans les basses couches (tableau III.3). On retrouve au Pic du Midi des valeurs assez comparables à celles des profils expérimentaux précédents (3000 m) ainsi que l'augmentation des concentrations avec l'altitude. Cependant, pour les ^{210}Pb et ^{210}Po, l'allure de variation est contraire à la théorie. Il faut en fait, ici aussi, éviter de vouloir géné-

raliser des résultats trop partiels. Dans le cas du ^{210}Pb il est vraisemblable que les masses d'air, de même origine, sont parvenues en général aux deux points de mesure après des parcours continentaux différents (valeurs de ^{210}Pb supérieures en altitude), et dans le cas du ^{210}Po il semble que des effets d'orage (cf. chapitre IV) ont donné des valeurs un peu plus élevées à Tarbes.

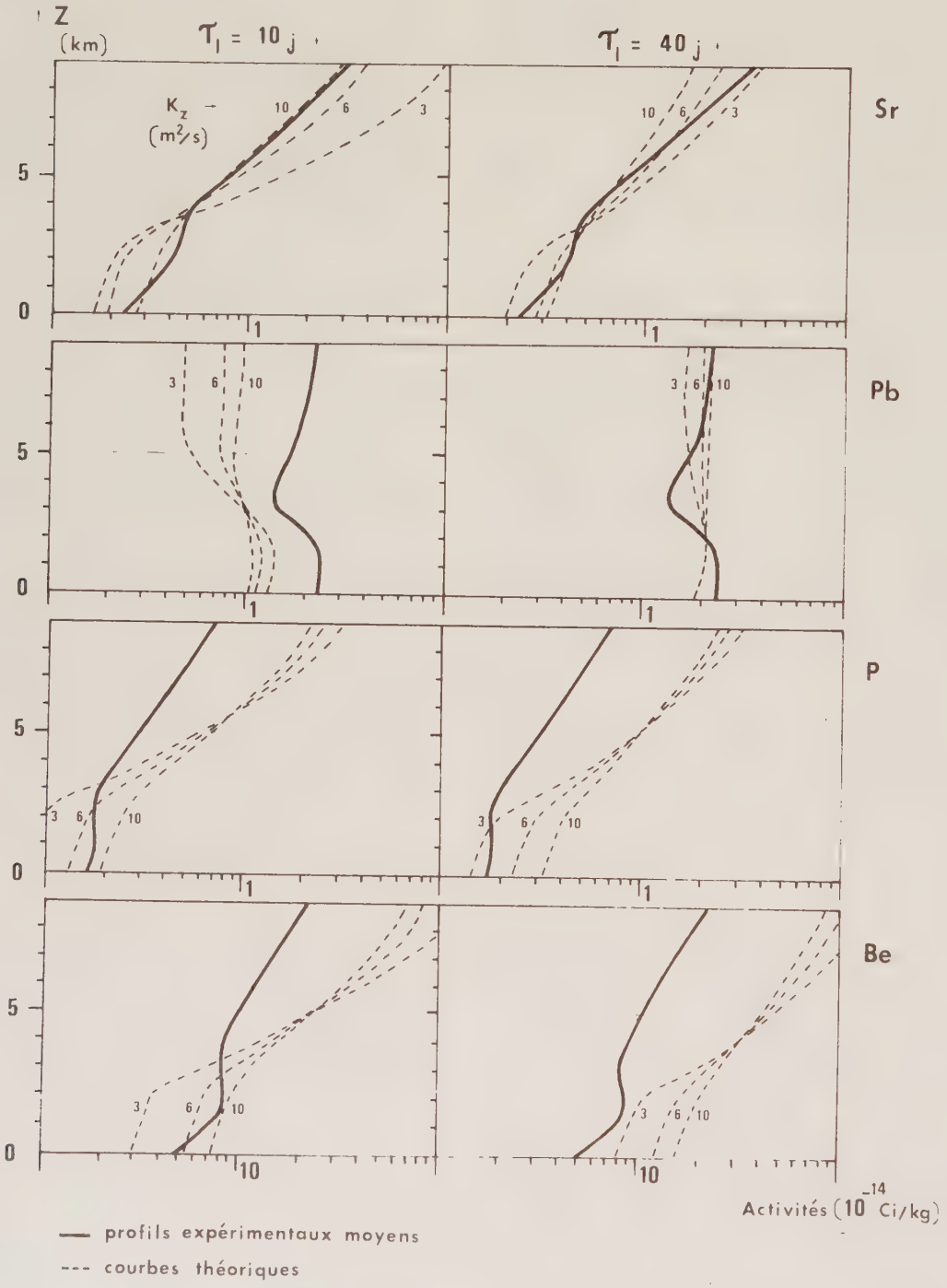

FIGURE III.13 - *Répartitions verticales des activités. Comparaison des profils expérimentaux moyens et des courbes théoriques établies par simulation sur modèles dans différentes conditions d'échange et de lessivage.*

Elément	Pic du Midi	Tarbes	Pic du Midi / Tarbes
Sr	0.385	0.240	1.60
Be	8.0	5.7	1.40
P	0.30	0.19	1.60
Po	0.117	0.126	0.93
Pb	1.05	0.72	1.47

TABLEAU III.3 - *Activités moyennes enregistrées en Mars 1967 dans deux stations voisines d'altitudes différentes : Pic du Midi (2800 m) et Tarbes (200 m, (activités exprimées en 10^{-14} Ci/kg).*

B. RAPPORT D'ACTIVITE

Les rapports d'activité sont théoriquement plus significatifs car ils permettent d'éliminer l'influence des phénomènes de lessivage récents. La figure III.14 présente, pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$, les profils de répartition verticale expérimentaux (valeur moyenne) et théoriques. On constate que la forme du profil expérimental correspond plutôt, dans les couches moyennes et supérieures, aux fortes valeurs du temps de lessivage (τ_1 = 40j), mais que les valeurs théoriques sont toujours plus élevées.

En fait, comme nous le verrons dans le chapitre V, il y a lieu de reconsidérer le rapport des taux de production Q_{Be}/Q_P, ce qui a pour effet de déplacer les profils théoriques vers les faibles valeurs. On observe alors une bonne correspondance pour les valeurs relativement faibles de K_z (2 à 3 m^2/s) et élevées de τ_1 (40 à 50 j), sauf dans la moyenne troposphère (1 à 4 km) où les valeurs expérimentales sont alors plus élevées. L'explication peut, comme nous le verrons dans le chapitre V, résider dans l'existence de phénomènes de subsidence dans les couches moyennes entrainant une augmentation du rapport $^{7}Be/^{32}P$.

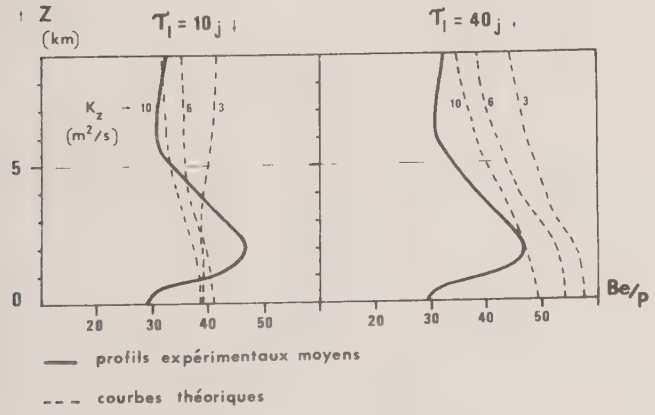

FIGURE III.14 - *Répartition verticale du rapport $^{7}Be/^{32}P$. Comparaison des profils expérimentaux moyens et des courbes théoriques établies par simulation sur modèles dans différentes conditions d'échange et de lessivage.*

Les résultats obtenus au Pic du Midi et à Tarbes se rapprochent par contre plus des valeurs théoriques (nouveaux taux de production) et on observe en altitude un rapport $^{7}Be/^{32}P$ de l'ordre de 27 et inférieur à celui existant dans l'air au niveau du sol (30).

On voit donc que l'étude du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air ne permet pas, non plus, de fixer les conditions moyennes d'échange vertical et de lessivage.

IV.2 - Mesures dans les pluies

Il est intéressant de considérer les rapports d'activité obtenus dans les précipitations (LACOMBE, 1968), représentatifs de ceux de l'air en altitude, qui fournissent, par le nombre de mesures réalisées, une meilleure statistique. On retrouve dans le cas du rapport $^{90}Sr/^{7}Be$ l'absence de variation systématique avec l'altitude dans la troposphère. Par contre, pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$ les résultats sont assez variables ; on obtient ainsi, dans 60% des cas, des rapports $^{7}Be/^{32}P$ inférieurs ou égaux à ceux existant dans l'air au niveau du sol ; les autres cas correspondent à des valeurs en altitude bien plus élevées.

Il est en définitive difficile de fixer pour ce rapport une répartition verticale, car il est possible d'avoir, aussi bien des profils décroissants avec l'altitude et correspondant au régime stationnaire, que des valeurs élevées en altitude traduisant un régime variable dans le temps.

Les résultats sont plus réguliers par contre dans le cas du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ et confirment qu'il augmente avec l'altitude. Il est même possible d'établir, à partir des mesures dans les pluies, une répartition verticale moyenne de ce rapport, d'après l'altitude moyenne des nuages générateurs. J'ai pour cela considéré l'ensemble de tous les résultats dans les précipitations, dont la bonne statistique (mesures continues sur deux années) permet de penser que l'estimation du profil moyen est correcte et que

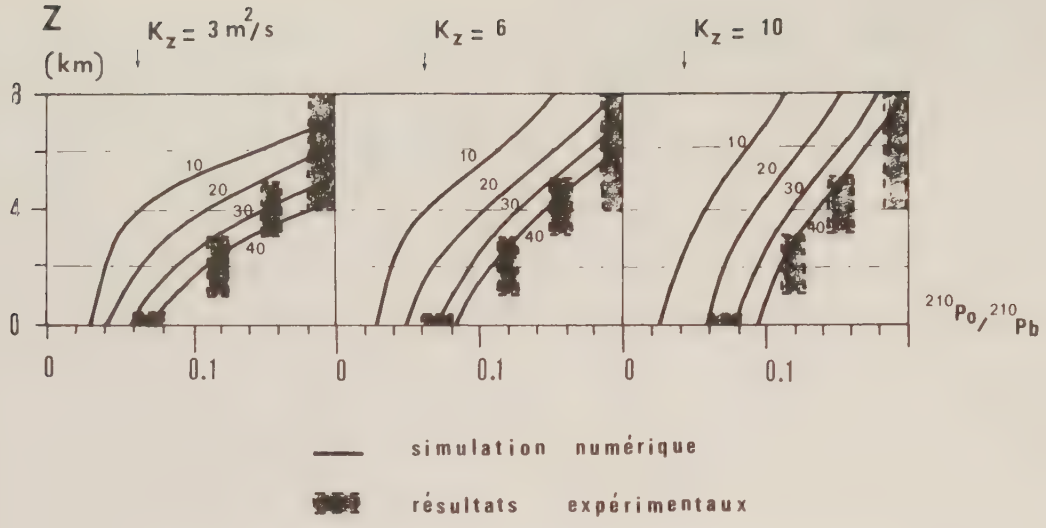

FIGURE III.15 - *Rapport d'activité $^{210}Po/^{210}Pb$. Comparaison des résultats expérimentaux avec les profils obtenus par simulation sur modèles, pour différentes valeurs des coefficients d'échange troposphériques (K_z : 3, 6, 10 m^2/s) et de lessivage ($1/\Lambda_l$: 10, 20, 30, 40 j).*

l'on peut le comparer avec les profils théoriques donnés par les modèles en régime stationnaire (plan source infini de dégagement du radon). Il y a lieu cependant de tenir compte de la position du lieu de mesure ; en effet, Toulouse, située à 300 km de l'Océan Atlantique, est soumise principalement aux influences océaniques. Les valeurs moyennes du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$, alors obtenues dans les basses couches (et particulièrement au niveau du sol), sont donc plus élevées que celles données par les modèles de simulation, dans des conditions de dégagement uniforme de radon (MARENCO et FONTAN, 1972-b). Les modèles plus complexes, simulant la succession des continents et des océans pour le 45° de latitude (cf. chapitre VI), montrent ainsi que, dans des conditions moyennes d'échange et de lessivage, la valeur du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ de 0.080, obtenue à Toulouse dans l'air près du sol, correspond à une valeur moyenne sur le globe (dégagement considéré comme uniforme) de 0.060 à 0.070.

La comparaison avec les profils théoriques (figure III.15) montre que la répartition moyenne dans la troposphère du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ correspond à des conditions d'échanges verticaux (Kz troposphérique) de 3 à 6 m^2/s et de lessivage (Λ_l) de 1/30 à 1/40 j^{-1}. Ces conditions permettent d'estimer les valeurs des temps de séjour troposphériques, à partir des modèles de simulation (cf. chapitre VI) : le temps de séjour troposphérique est de l'ordre de 45 jours pour le ^{210}Po et il varie de 20 à 100 jours pour des éléments injectés continuellement entre le niveau du sol et la tropopause.

Ces résultats, malgré le nombre relativement faible de mesures, montrent bien tout l'intérêt des profils de répartition verticale dans la détermination des paramètres importants de l'atmosphère (coefficients d'échange et de lessivage). Il serait nécessaire, à ce point de vue, de multiplier le nombre d'expériences en altitude afin de dégager les profils moyens représentatifs du régime stationnaire.

V. INFLUENCE DES ECHANGES VERTICAUX

Nous avons vu que les concentrations des éléments, dans l'air au niveau du sol, dépendaient fortement de la variation des sources et des phénomènes de lessivage, les phénomènes de circulation horizontale intervenant aussi dans certains cas. Cependant, il est vraisemblable que les échanges verticaux vont avoir une influence importante sur les variations d'activité dans les basses couches, étant donné les répartitions des éléments dans la troposphère. Je ne traiterai ici que de l'influence des mouvements moyens, en simulant en régime stationnaire la variation du coefficient d'échange troposphérique moyen Kz. On constate que conformément à ce quel'on pouvait attendre de l'allure des répartitions verticales, les activités dans les basses couches des ^{7}Be, ^{32}P,

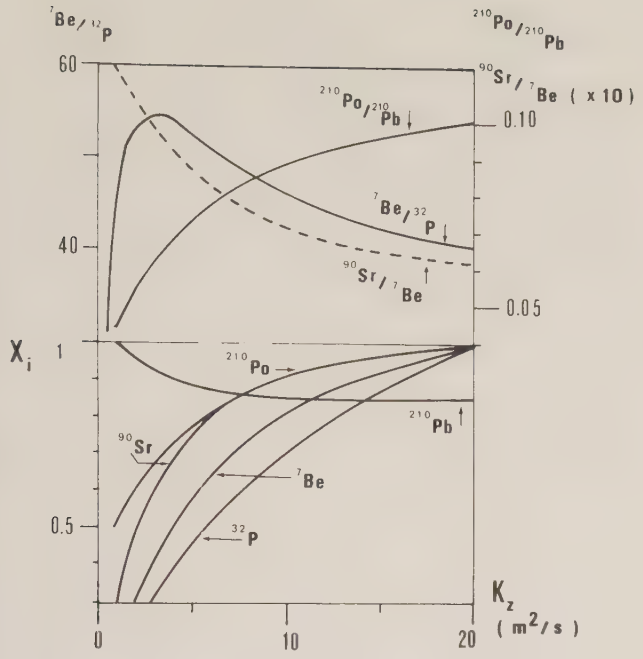

FIGURE III.16 - *Simulation sur modèles (λ_1 : 1/30 j^{-1}). Variations des activités et rapports d'activité, dans l'air au niveau du sol, en fonction du coefficient d'échange troposphérique moyen K_z.*

^{90}Sr et ^{210}Po augmentent avec Kz, alors que c'est l'inverse pour le ^{210}Pb (amplitude de variation plus faible) (figure III.16). Les rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{90}Sr/^{7}Be$ augmentent et diminuent respectivement lorsque s'accroissent les échanges verticaux. On observe un maximum du rapport $^{7}Be/^{32}P$ pour une valeur de Kz de l'ordre de 2 m^2/s ; dans la troposphère (où Kz est en général supérieur à cette valeur) l'augmentation de Kz entraîne donc une diminution du rapport $^{7}Be/^{32}P$ qui passe ainsi de 54 à 40, lorsque Kz varie de 2 à 20 m^2/s.

Lorsque l'on utilise ces résultats théoriques pour interpréter les variations expérimentales, il faut tenir compte de ce que les effets sont masqués dans le cas des rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{90}Sr/^{7}Be$, car la variation des sources de ^{90}Sr et ^{210}Pb est prépondérante. Il est par contre possible d'expliquer qualitativement la variation périodique du rapport $^{7}Be/^{32}P$, où les sources sont bien moins variables, par la diminution du coefficient d'échange troposphérique en hiver (augmentation du rapport), ce qui concorde avec ce que l'on connaît de la variation de ce coefficient au cours de l'année.

C'est ainsi que, dans les modèles de simulation (SEITZ et al. 1968 ; MACHTA et al., 1970), les auteurs considèrent généralement des valeurs de Kz de l'ordre de 3 m^2/s en hiver et de 6 à 10 m^2/s en été (convection thermique). Un tel effet n'est pas contredit par les variations d'activité observées à Toulouse, montrant l'augmentation des ^{90}Sr, ^{7}Be et ^{32}P, au printemps et en été, et la diminution à cette époque du ^{210}Pb (le ^{210}Po étant intermédiaire). Cependant, la variation des échanges verticaux ne saurait expliquer, seule, l'amplitude de variation du rapport $^{7}Be/^{32}P$, à moins de considérer pour Kz une variation telle qu'elle semble peu probable. Il est vraisemblable que les phénomènes intervenant en régime transitoire sont aussi responsables de la variation du rapport $^{7}Be/^{32}P$, en raison notamment de la différence de comportement des ^{7}Be et ^{32}P, due à leurs périodes radioactives différentes.

VI. DISCUSSION

J'ai montré, à l'aide de mesures fines de divers éléments, que l'augmentation des ^{7}Be et ^{32}P, au printemps et en été, n'était pas due à des apports stratosphériques. Cette conclusion s'oppose en particulier à celle tirée par RANGARAJAN et GOPALAKRISHNAN (1970) de mesures relativement courtes (prélèvements de 7 jours), réalisées pendant une année à Bombay (18°N) .

Ces auteurs observent des variations très proches pour les ^{7}Be et ^{137}Cs durant toute l'année (maximum de printemps) et concluent à une contribution stratosphérique en ^{7}Be variant de 25 à 60 %. En fait, la concordance des variations de ^{7}Be et ^{137}Cs aux faibles latitudes ne suffit pas à prouver l'existence de tels apports. Il est en effet reconnu que les arrivées stratosphériques se produisent principalement aux latitudes moyennes (jet stream lié au front polaire); étant donné la répartition des activités, maximales pour le ^{7}Be et les produits de fission à ces latitudes, celles-ci vont se comporter comme un réservoir vis à vis des basses et hautes latitudes. On observe donc, de part et d'autre (régions tropicales et polaires), la variation des échanges méridiens, modulée par les conditions locales de lessivage et d'échanges verticaux. Il est donc normal d'observer des variations équivalentes pour ces deux séries d'éléments, dans les régions polaires (THOMAS et al., 1970) et dans les régions tropicales (RANGARAJAN et GOPALAKRISHNAN, 1970). Le décalage des maxima, existant dans l'air des basses couches aux moyennes latitudes, se re-

trouve aussi bien dans les mesures à Toulouse (43°N) que dans celles de THOMAS (46°N) et de KOLB (51°N). Il existe pourtant une contribution stratosphérique résultant des échanges continus durant toute l'année à travers la tropopause, mais elle est relativement constante ; une étude sur modèle, dans des conditions moyennes (tropopause à 11 km ; Kz troposphérique de 6 m^2/s ; Kz stratosphérique de 0.4 m^2/s; Λ_1 égal à 1/30 j^{-1}) permet de la chiffrer à environ 5 % pour le ^{32}P et 15% pour le ^{7}Be, dans l'air au niveau du sol. Les variations des ^{7}Be et ^{32}P dans l'air des basses couches sont donc dues à la combinaison des phénomènes de lessivage et d'échanges verticaux dans la troposphère.

Cette étude montre un désaccord manifeste entre les valeurs moyennes du rapport $^{7}Be/^{32}P$, calculées à l'aide des modèles, et celles déterminées expérimentalement. On enregistre ainsi à Toulouse, entre 1966 et 1969, une valeur moyenne du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ de l'ordre de 30 dans l'air au niveau du sol, et pouvant varier entre 38-40 en hiver et environ 24 en automne. Les résultats de la simulation numérique sur modèles en régime stationnaire donnent une valeur moyenne de ce rapport d'environ 52 (Kz : 6 m^2/s ; Λ_1 : 1/30 j^{-1}). Il passe de 54 à 40, lorsque Kz varie de 2 à 20 m^2/s (Λ_1 : 1/30 j^{-1}), et de 59 à 34, lorsque Λ_1 passe de 1/100 à 1/5 j^{-1} (Kz : 6 m^2/s). Même si le régime stationnaire n'est jamais strictement réalisé dans l'atmosphère, il est cependant possible de trouver un régime stationnaire équivalent, représentant en valeur moyenne les conditions d'échange et de lessivage. Or, on constate que les valeurs du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ obtenues théoriquement sont toujours bien supérieures aux résultats expérimentaux moyens. Même dans le cas où l'on prend des conditions de lessivage très intenses, on approche à peine de la valeur 34 pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$, et ces conditions sont incompatibles avec les niveaux d'activité des ^{7}Be et ^{32}P ainsi qu'avec les valeurs expérimentales moyennes du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$. L'explication de ce désaccord réside en fait, comme nous le verrons dans le chaitre V, dans une sous-estimation de l'efficacité de production du ^{32}P, les courbes de répartition verticale des taux d'étoiles nucléairesrestant inchangées.

☆ ☆
☆

CHAPITRE IV

ETUDE DES SOURCES DE POLONIUM-210 DANS LA TROPOSPHERE (1)

On a principalement utilisé le ^{210}Po, en physique de l'atmosphère, pour déterminer le temps de séjour des aérosols dans la troposphère au moyen du rapport d'activité $^{210}Po/^{210}Pb$ (cf. chapitre VI). Cependant, l'utilisation de cet élément a été récemment très critiquée et son origine dans la troposphère a été complètement remise en question par MARTELL et par VILENSKIY.

Les conclusions de ces auteurs ne reposant que sur des déductions indirectes, j'ai utilisé l'ensemble de mes résultats pour rechercher directement l'existence de telles sources dans le S-O de la France, en étudiant également de manière plus générale l'origine du ^{210}Po dans l'air.

I. SOURCES DE POLONIUM-210 DANS L'ATMOSPHERE

L'existence de sources de ^{210}Po, autres que la désintégration du ^{210}Pb présent dans l'air avait déjà été envisagée par certains auteurs qui les considéraient plutôt comme des apports complémentaires que comme des sources réellement importantes. MARTELL (1970) (MARTELL & POET , 1969, 1970), VILENSKIY (1970) et POET (1972) ont pour leur part, considéré que ces sources étaient prépondérantes et constituaient la majeure partie (80 à 98 %) du ^{210}Po présent dans l'air troposphérique.

C'est initialement afin d'expliquer les fortes valeurs de ^{210}Po, souvent constatées dans les basses couches, et surtout les différences obtenues entre les temps de séjour calculés à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, que ces auteurs ont été amenés à tirer une telle conclusion. Ils ont également appuyé leur démonstration sur la présence de ^{226}Ra dans l'air, pour prouver que la source principale était localisée au sol .

Les hypothèses envisagées dans la littérature font état de cinq possibilités : l'origine fossile, tellurique, maritime, stratosphérique et artificielle.

I.1 - Source fossile

Les charbons, les bois, les fuels et le Plomb tétraéthyl renferment du ^{210}Po "fossile", en équilibre radioactif avec le ^{210}Pb, et la combustion de ces produits met en suspension, dans l'air des basses couches, ces deux radionucléides (STYRA, 1960 ; PEIRSON, 1967 ; MARTELL 1970 ; MARTELL & POET, 1969, 1970 ; MATTSON, 1970 ; JAWOROWSKI , 1971). Etant donné le déséquilibre radioactif important existant normalement dans l'air entre ces deux éléments, cet apport va modifier le rapport de leurs concentrations. MATTSON (1970) et MARTELL (1970) envisagent même un enrichissement éventuel des fumées en ^{210}Po, étant donné la volatilité de ce dernier.

I.2 - Source tellurique

Le sol et les poussières déposées en surface contiennent également du ^{210}Po, vraisemblablement en équilibre avec le ^{210}Pb. L'érosion éolienne et les phénomènes de turbulence

---

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue "Tellus" (MARENCO & FONTAN, 1972-a).

peuvent mettre ces éléments en suspension dans l'air (KAROL, 1969 ; MARTELL, 1970 ; MARTELL & POET, 1969, 1970 ; VILENSKIY, 1970 ; POET et al. 1972 ; MOORE et al., 1973). VILENSKIY (1970) a trouvé dans les couches superficielles du sol (5 cm), des valeurs très élevées (3 à 25) pour le rapport d'activité $^{210}Pb/^{226}Ra$, et l'a attribué aux poussières atmosphériques. A partir de mesures de ^{210}Pb et ^{226}Ra dans les retombées près de Moscou, il a estimé que la contribution en ^{210}Pb d'origine tellurique était comprise entre 2 et 46 %. Il s'ensuit qu'une grande partie du ^{210}Po atmosphérique serait également d'origine tellurique.

I.3 - Source maritime

Certains auteurs, ayant constaté un enrichissement en ^{210}Po dans le zooplancton en suspension dans l'eau de mer (rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ de 10 à 20), ont récemment envisagé la possibilité d'un départ de ^{210}Po dans l'atmosphère avec les aérosols d'origine marine (TUREKIAN et al., 1973). Ceci suppose toutefois que cet enrichissement en ^{210}Po existe aussi, à l'interface air-mer, dans les matières organiques du film de surface.

I.4 - Source stratosphérique

Les aérosols qui pénètrent dans la stratosphère (en particulier le ^{210}Pb...) y demeurent en moyenne de 1 à 2 ans ; le ^{210}Po peut ainsi approcher de l'équilibre avec le ^{210}Pb (rapport des activités compris entre 0.6 et 1). La stratosphère va se comporter comme un réservoir, donc comme une source de ^{210}Po, vis-à-vis de la troposphère (BURTON & STEWART, 1960 ; LAMBERT et NEZAMI, 1965).

LAMBERT (1965) tient compte de cet apport, dans le calcul du temps de séjour des aérosols dans la troposphère à partir du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$. Estimant que la fraction stratosphérique peut varier de 0.05 à 0.50, il obtient, pour un rapport d'activité moyen dans les pluies de 0.11, des valeurs de temps de séjour variant de 33 à 42 jours.

I.5 - Source artificielle

De nombreux auteurs enfin ont envisagé la possibilité de formation de ^{210}Pb lors des essais nucléaires (STEBBINS, 1961 ; OSBORNE, 1963 ; PEIRSON et al.,1966 ; JAWOROWSKI , 1967 ; KREY, 1967-a), en particulier pour expliquer les fortes valeurs de cet élément mesurées dans la stratosphère lors du projet Stardust (KREY, 1967-a ; FEELY et al., 1965).

De la même manière que pour les produits de fission, la stratosphère pourrait se comporter comme un réservoir de ^{210}Pb (d'origine artificielle), et par conséquent de ^{210}Po après mise en équilibre. Cette hypothèse a finalement été écartée par FEELY (1970) qui a réanalysé les échantillons stratosphériques (collectés lors du Projet Stardust) ayant donné des valeurs anormales de concentrations pour le ^{210}Pb. Les valeurs de 3 à 4.1 x 10^{-14} Ci/m^3, trouvées précédemment, ont été réduites à des valeurs de 0.6 à 1.0 x 10^{-14} Ci/m^3, semblables aux concentrations généralement mesurées dans la stratosphère.

II. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET METHODES DE TRAITEMENT

Les résultats obtenus à Toulouse, dans

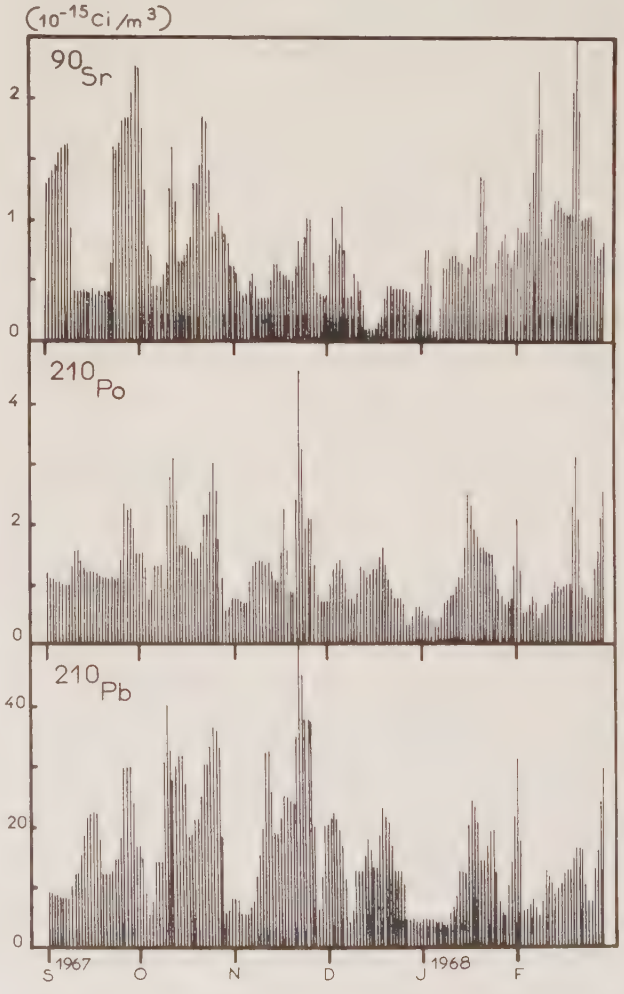

FIGURE IV.1 - *Variations des activités journalières dans l'air au niveau du sol à Toulouse.*

l'air et les précipitations, me permettent d'étudier de manière directe, et par des moyens variés, le problème du ^{210}Po.

Je dispose, tout d'abord, de mesures simultanées d'éléments radioactifs d'origines différentes ainsi que de plomb et de phosphore stables qui sont, comme nous le verrons, représentatifs d'une pollution urbaine et industrielle. La figure IV.1 présente à titre d'exemple les variations journalières d'activité dans l'air des ^{210}Pb, ^{210}Po et ^{90}Sr sur une période de 6 mois (septembre 1967 à février 1968),et la figure IV.2 les variations mensuelles dans l'air et les précipitations de ces mêmes éléments entre Septembre 1965 et Septembre 1968. *(On trouvera en Annexe A.1 l'ensemble des variations journalières pour tous les éléments)*

Les variations journalières d'activité montrent, pour le ^{210}Po, l'existence de fortes valeurs, généralement associées à de fortes teneurs en ^{210}Pb. De manière générale, on constate sur les deux figures la similitude entre les variations des ^{210}Po et ^{210}Pb, qui ne correspondent pas par contre avec celles du ^{90}Sr. Enfin, on remarque également que, si dans le cas du ^{210}Pb et du ^{90}Sr les variations mensuelles d'activité dans l'air et les précipitations se suivent bien, il n'en est pas de même dans celui du ^{210}Po. En effet, dans le cas des ^{210}Pb et ^{90}Sr, les effets saisonniers (augmentation de printemps du ^{90}Sr apparente dans l'air et les précipitations, et fortes valeurs en ^{210}Pb dans l'air des basses couches en automne) ont plus d'influence que la variabilité des caractéristiques physiques des précipitations (LACOMBE, 1968).

Par ailleurs, l'ensemble des mesures fines et continues, étalées sur plusieurs années me permet d'utiliser des méthodes d'analyse et de recherche bien supérieures à la simple comparaison des variations moyennes. Comme nous l'avons vu précédemment (cf. chapitre III), j'ai ainsi traité mes résultats de manière statistique, en calculant en particulier les corrélations ou cross-corrélations existant entre deux éléments ou encore entre un élément et des paramètres caractéristiques de l'atmosphère.

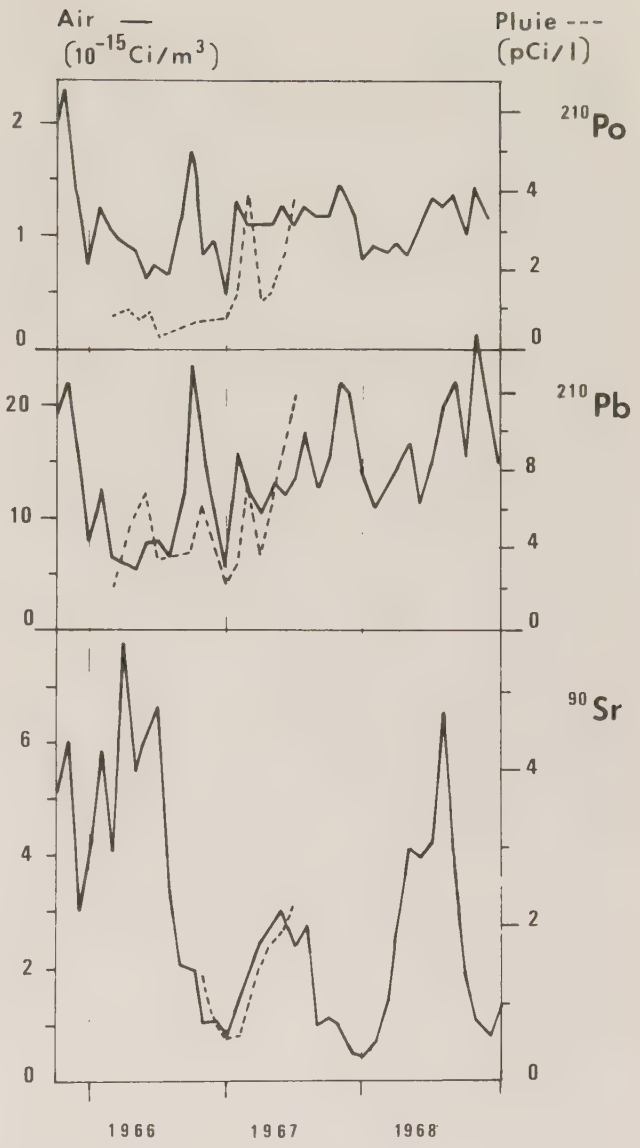

FIGURE IV.2 - *Variations des activités mensuelles dans l'air et les précipitations à Toulouse.*

III. DISCUSSION DES SOURCES DE POLONIUM-210 DANS LA TROPOSPHERE

III.1 - Origine fossile

A. ETUDE GENERALE

Un des arguments avancé pour prouver l'origine fossile du ^{210}Po est la présence de ^{226}Ra dans les eaux de pluie. Cet élément est en effet principalement introduit dans l'atmosphère par la combustion des combustibles fossiles (JAWOROWSKI , 1971). Sa teneur dans l'air étant très faible, il n'a en fait été détecté que dans les précipitations. Les ^{210}Pb et ^{210}Po fossiles sont en équilibre avec le ^{226}Ra et on peut calculer à partir des teneurs en cet élément la contribution en ^{210}Po.

- JAWOROWSKI a montré, au moyen des bilans mondiaux d'émission du ^{226}Ra, que son activité moyenne dans les pluies devait être très faible (4×10^{-4} pCi/l). Compte tenu de l'activité moyenne des précipitations en ^{210}Po (1 pCi/l), on voit que la contribution en ^{210}Po fossile

est négligeable à l'échelle globale.

- Les mesures de ^{226}Ra citées dans la littérature montrent cependant que les teneurs en ^{226}Ra dans les pluies peuvent être bien plus élevées (jusqu'à 1 ou 2 pCi/l) ce qui peut entrainer une contribution très importante en ^{210}Po. En fait, si l'on reprend le détail des mesures (DAMON & KURODA, 1953 ; BANERJI & CHATTERJE, 1966 ; JAWOROWSKI et al., 1971), on s'aperçoit que les valeurs élevées sont obtenues dans des zones très localisées autour des lieux d'émission (centrales thermiques...) et dans le cas de pluies très courtes (effet de lessivage des basses couches par "washout") ; les valeurs moyennes sont généralement inférieures à 10^{-2} pCi/l. Si donc il y a possibilité de "contamination" par du ^{210}Po d'origine fossile, elle ne peut être que très localisée autour des lieux d'émission, et elle disparait rapidement dès que l'on s'en éloigne.

B. ETUDE A TOULOUSE

J'ai donc recherché si mes mesures de ^{210}Po à Toulouse pouvaient présenter une telle origine fossile. J'ai pour cela considéré que le plomb stable était un bon indicateur pour caractériser la pollution urbaine. Car, bien qu'il soit introduit dans l'air par les automobiles alors que le ^{210}Po le serait par les chauffages domestiques ou industriels, on peut admettre en ce qui nous concerne qu'ils ont tous deux la même zone de production : la ville de Toulouse.

La quantité de ^{210}Po elle-même introduite avec le plomb stable dans l'air est faible. En effet, les teneurs moyennes en ^{210}Po, trouvées au laboratoire dans le plomb tétraéthyl, sont inférieures à 10^{-16} Ci/µg de plomb, et les concentrations de plomb stable dans l'air, mesurées à Toulouse, varient entre 10^{-2} et 1 µg/m^3. La contribution maximale en ^{210}Po est donc de 10^{-16} Ci/m^3, ce qui est inférieur au 1/10° de la concentration moyenne de cet élément dans l'air.

J'ai également observé à Toulouse la production de phosphore stable par la zone industrielle située en bordure de la ville. On peut ainsi considérer le phosphore comme représentatif de la pollution de cette zone.

J'ai donc étudié les corrélations pouvant exister entre les concentrations de ^{210}Po et celles de plomb et de phosphore stables. A titre de comparaison, j'ai effectué les mêmes calculs avec chacun des autres éléments radioactifs. On n'observe pas de corrélation entre le ^{210}Po et les éléments caractéristiques d'une pollution. Aucun pic n'est décelable dans les diagrammes de cross-corrélation et les coefficientsde stricte corrélation (retard nul) sont très faibles (0.05 à 0.1). Il en est de même pour les autres éléments radioactifs.

On peut donc négliger l'origine fossile du ^{210}Po à Toulouse.

III.2 - Origine tellurique

A. ETUDE GENERALE

Un bilan rapide montre que cette source peut être à prendre en considération. En considérant des teneurs en radium comprises entre 0.1 et 100 pC/g de terre (Rapport CSNU, 1958) et en supposant que tous les descendants de la chaine de l'Uranium-Radium sont en équilibre radioactif, on peut calculer des valeurs théoriques de ^{210}Po comprises entre 10^{-17} et 10^{-14} Ci/m^3, pour des concentrations élevées de poussières de 100 µg/m^3 dans l'air.

Cela n'est plus tout à fait négligeable, surtout si l'on tient compte de la possibilité d'enrichissement en ^{210}Pb (et en ^{210}Po en équilibre) dans les couches superficielles du sol.

J'ai également réalisé des mesures de ^{226}Ra et ^{210}Pb dans les couches superficielles de divers sols (0-5 cm), dans le S-O de la France. Contrairement à VILENSKIY (1970) et à MOORE (1973), j'ai observé pour ma part que les ^{210}Pb et ^{226}Ra étaient pratiquement à l'équilibre (tableau IV.1).

Il est en fait très délicat d'étendre à toute la troposphère, comme le fait VILENSKIY, les résultats de retombées mesurées au niveau du sol, car les phénomènes de dépôt sec sont prépondérants dans le dépôt total pour des produits originaires du sol (cf. chapitre VI). D'autre part, le ^{226}Ra venant dans l'air principalement des combustions plutôt que de l'arrachement de particules du sol, il n'est pas correct de calculer des contributions en ^{210}Pb (et en ^{210}Po) avec des facteurs d'enrichissement ($^{210}Pb/^{226}Ra$ de 3 à 25) qui ne sont valables que pour des sols.

Sol	^{226}Ra(pC/g)	^{210}Pb(pC/g)	$^{210}Pb/^{226}Ra$
Argileux	0.34	0.33	0.97
Sableux	0.30	0.27	0.90

TABLEAU IV.1 - *Valeurs moyennes de ^{226}Ra et ^{210}Pb contenus dans les couches superficielles du sol.*

B. ETUDE A TOULOUSE

Les poussières, arrachées au sol ou à la végétation, étant mises en suspension dans l'air lors des périodes de turbulence, j'ai étudié les corrélations existant entre les variations d'activité du ^{210}Po et la vitesse des vents. On observe une anticorrélation nette pour le ^{210}Po, encore plus accusée pour le ^{210}Pb.

Les vents forts, lorsqu'ils correspondent dans le Sud-Ouest à un régime de vents d'Ouest, sont en général associés à des perturbations et à des précipitations. Il en résulte que la quantité de poussières arrachées au sol est plus faible, ce qui risque de masquer l'effet recherché. Cependant, le rapport $^{210}Po/^{7}Be$, qui permet comme on l'a vu de s'affranchir de ces phénomènes, n'est pas lui non plus corrélé avec la vitesse des vents.

Il existe aussi un régime de vents dominants du Sud-Est (vent d'Autan), très secs, qui peuvent atteindre des vitesses de 20 m/s au niveau du sol et qui s'accompagnent d'une mise en suspension de poussières dans l'air. Pourtant si l'on trouve une bonne corrélation entre le régime de vent d'Autan, ou la vitesse de ce vent, et les concentrations des éléments radioactifs (autres que le ^{210}Po), on remarque une corrélation plus faible avec le ^{210}Po, et on ne constate par contre aucune corrélation avec les rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ ou $^{210}Po/^{7}Be$.

Ces divers résultats rejoignent ceux de JOSHI (1968) qui a montré, en étudiant les teneurs en ^{210}Pb et Uranium dans l'air et dans les sols, que la proportion de ^{210}Pb d'origine tellurique dans l'air était faible (0.4 et 1.4%). Pour un rapport moyen $^{210}Po/^{210}Pb$ de l'ordre de 0.10, ces valeurs conduisent à une contribution maximale en ^{210}Po de 14%, c'est-à-dire une valeur faible devant les 90 à 98 % calculés par POET et al. (1972). Ces proportions sont encore plus petites pour des rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ supérieurs à 0.10,qui sont ceux les plus susceptibles de résulter d'une contamination tellurique.

Le processus de mise en suspension de poussières telluriques par les vents n'intervient donc pas de manière sensible comme source de ^{210}Po dans l'air, tout au moins dans la région où mes mesures ont été faites.

III.3 - Origine maritime

L'étude des corrélations existant entre les activités des éléments et la nature des masses d'air montre :

- pour les activités des éléments, une corrélation élevée avec les masses d'air continentales et une anticorrélation accusée avec les masses d'air maritimes (relations encore plus accusées pour le ^{210}Pb : cf. chapitre III) ;
- pour le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$, une forte corrélation avec les masses d'air maritimes et une anticorrélation avec les masses d'air continentales (ces deux relations proviennent en effet de ce que les concentrations en ^{210}Pb sont relativement plus fortes dans l'air continental, à cause du dégagement du radon).

On vérifie ici aussi que les fortes valeurs du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ ne proviennent pas d'une source de pollution continentale. On pourrait craindre qu'une augmentation éventuelle du ^{210}Po dans l'air continental ne soit masquée par l'augmentation plus rapide du ^{210}Pb. Il suffit de considérer le rapport $^{210}Po/^{7}Be$, qui n'est pas corrélé avec l'air continental, pour écarter définitivement cette possibilité.

La corrélation, existant entre le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ et les masses d'air océaniques, a été interprétée par certains auteurs (TUREKIAN et al., 1973) comme un argument en faveur de l'origine marine du ^{210}Po. En fait.comme je l'ai déjà dit, cette corrélation ne provient pas d'une augmentation relative plus importante du ^{210}Po dans les masses d'air maritimes, mais bien d'une diminution relative plus importante du ^{210}Pb.Il suffit d'ailleurs, pour trancher la question, de considérer le rapport $^{210}Po/^{7}Be$ qui n'est pas corrélé, lui, avec les masses d'air océaniques.

On peut objecter que, si les sources continentales et maritimes sont de même importance, une telle étude ne permet pas de les distinguer et donc de les infirmer. Cependant, j'ai montré par des méthodes différentes que le ^{210}Po n'était pas d'origine continentale, puisque les seules sources possibles (fossiles ou telluriques) n'intervenaient pas. Il s'ensuit donc que la source maritime est elle aussi à écarter, au moins à Toulouse. Toutefois, cette ville étant soumise de manière importante aux influences océaniques, on peut penser que ce résultat est aussi valable à une échelle plus générale.

III.4 - Origine stratosphérique

Cette source est relativement facile à étudier puisque l'on dispose du ^{90}Sr, représentatif comme nous l'avons vu des produits d'origine stratosphérique.

On ne constate aucune corrélation entre le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ et le ^{90}Sr, ce qui mon-

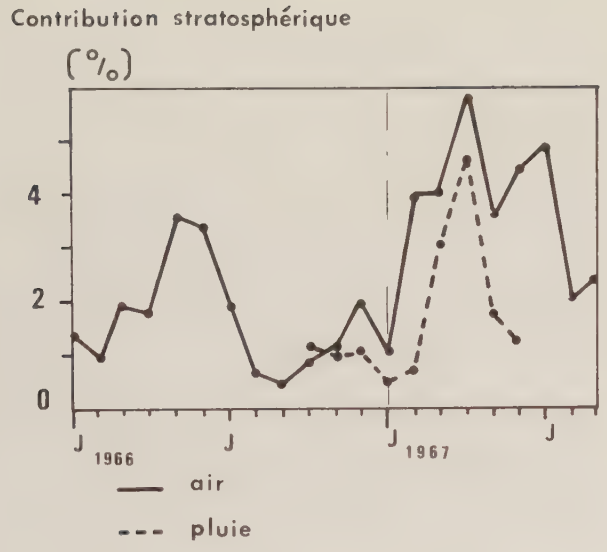

FIGURE IV.3 - *Pourcentages mensuels de ^{210}Po d'origine stratosphérique dans l'air et les précipitations à Toulouse (valeurs théoriques calculées à partir des variations de ^{90}Sr).*

tre que les fortes valeurs de ce rapport (et donc du ^{210}Po) mises en évidence dans les basses couches ne sont pas imputables à de telles introductions. J'ai, d'autre part, calculé le pourcentage mensuel de ^{210}Po d'origine stratosphérique, dans l'air et les précipitations, à partir des résultats de ^{210}Po et ^{90}Sr obtenus à Toulouse et des valeurs stratosphériques moyennes pour la bande de latitude 40-60°N (figure IV.3). En effet, l'analyse des résultats publiés par le "Health and Safety Laboratory" (HASL 2 - 1967 à 1970) permet de fixer :

- à 0.6×10^{-14} Ci/m^3, la concentration stratosphérique moyenne en ^{210}Po (12 à 18 km) ;
- l'évolution correspondante pour le ^{90}Sr entre 1966 et 1968 (de 2 à 0.15 pCi/m^3 ; valeur moyenne 0.5 pCi/m^3).

On constate que le pourcentage stratosphérique de ^{210}Po ainsi calculé est faible et varie entre 0.5 et 6 %.

Enfin, on peut également estimer cette contribution au moyen de bilans plus généraux.

A. DE MANIERE LOCALE

- En considérant le taux de dépôt de ^{90}Sr par les précipitations humides à Toulouse (6.06×10^{-14} Ci/cm^2.an), les concentrations stratosphériques moyennes pour le ^{90}Sr et le ^{210}Po, et en négligeant le dépôt sec, on trouve une introduction stratosphérique en ^{210}Po de 0.07×10^4 at/cm^2.an.
- En intégrant, sur une colonne troposphérique de 1 cm^2 de section, la formation de ^{210}Po à partir d'une concentration moyenne de 1.4×10^{-14} Ci/kg en ^{210}Pb (BURTON & STEWART, 1960 ; RAMA & HONDA, 1961 ; KAROL, 1970), on obtient une production troposphérique de 1.28×10^4 at/cm^2.an.

La fraction de ^{210}Po d'origine stratosphérique ne représente donc que 5% de la production troposphérique.

B. DE MANIERE GLOBALE

Si l'on considère les masses des réservoirs troposphérique (4.1×10^{18} kg) et stratosphérique (1.1×10^{18} kg), (TELEGADAS, 1968), pour un temps de séjour dans la basse stratosphère de l'ordre de 12 mois (entre 9 et 13 mois) (ROEDEL, 1967 ; BA CUONG NGUYEN, 1968 ; KREY et al., 1969), la masse stratosphérique échangée est de l'ordre de 0.67×10^{18} kg/an (CHI TRACH HOANG, 1969). Cela correspond à une introductior de 0.26×10^{22} at/an de ^{210}Po. La production troposphérique à partir du ^{210}Pb étant de 5.3×10^{22} at/an, le pourcentage de polonium d'origine stratosphérique ainsi calculé n'est que de 5%.

Donc, tous les calculs montrent bien que l'on peut négliger, dans la troposphère, l'apport stratosphérique de ^{210}Po.

III.5 - Effets d'orages

Comme je l'ai signalé précédemment (cf. chapitre III), les mesures d'activité effectuées simultanément au Pic du Midi et à Tarbes ont révélé des répartitions verticales particulières pour le ^{210}Po -concentrations supérieures dans la station de plaine- dans le cas de perturbations orageuses .

Cette constatation, jointe aux propriétés chimiques très particulières du ^{210}Po et à son comportement singulier dans le cas de pluies d'orages (LACOMBE, 1968), m'a conduit à étudier les corrélations entre les activités du ^{210}Po et les divers types de précipitations. On observe ainsi :

- une anticorrélation très marquée entre les concentrations de tous les éléments et la durée journalière des précipitations (représentative du lessivage de l'atmosphère) ;
- rien de significatif lorsque l'on sélectionne les pluies d'averses ;
- une corrélation, faible mais certaine pour le ^{210}Po seulement, dans le cas de pluies d'orages.

L'étude des répartitions statistiques des activités du polonium et du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$, dans trois cas (orage, pluie, pas de

pluie), montre bien aussi l'augmentation très nette du pourcentage de fortes valeurs dans les cas d'orages (CROZAT, 1969) (figure IV.4).

L'explication de ce phénomène reste délicate. Il est possible qu'il soit dû à une réévaporation du ^{210}Po contenu dans les précipitations, lors de leur chute dans les basses couches ou au contact d'un sol chaud. On observe d'ailleurs (LACOMBE, 1968) des activités spécifiques en ^{210}Po, dans les précipitations, bien plus fortes dans le cas de pluies d'orages (cumulus, cumulonimbus).

Cependant, cet effet, s'il apparaît nettement dans les cas individuels, ne tient que peu de place dans le bilan général du ^{210}Po, étant donné la faible proportion de phénomènes orageux, à la latitude où ont été effectuées mes mesures.

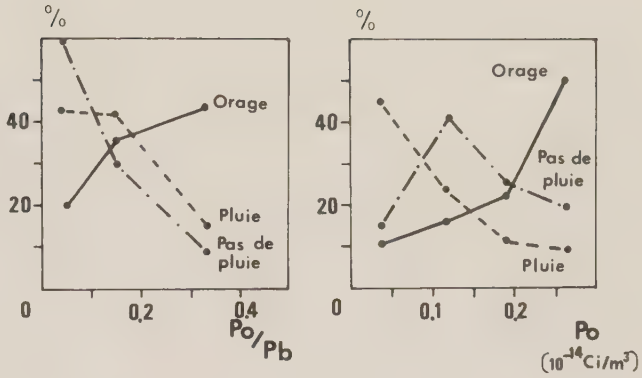

FIGURE IV.4 - *Répartition statistique des rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et des concentrations de ^{210}Po dans les 3 cas : pas de pluie, pluie, orages.*

IV - CONCLUSION

La discussion des sources de Polonium envisagées dans la littérature montre qu'elles n'interviennent pas de manière importante, tout au moins en ce qui concerne mes mesures. Mes résultats ayant été cités par certains auteurs comme devant présenter des "contaminations" (fortes valeurs de ^{210}Po et $^{210}Po/^{210}Pb$), le fait de ne rien constater à Toulouse semble donc significatif à plus grande échelle. D'ailleurs, une partie importante de la discussion concerne aussi l'échelle globale (bilans ; utilisation du ^{226}Ra...).

D'autre part, comme nous le verrons au chapitre VI, les différences constatées expérimentalement entre les temps de séjour tirés des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$ sont normales. Aucun des arguments, sur lesquels les auteurs se sont appuyés pour démontrer l'origine complémentaire du ^{210}Po, ne résiste finalement à l'analyse.

On constate dans mes mesures la très bonne corrélation du ^{210}Po avec le ^{210}Pb (cf. chapitre III), qui se révèle bien en être la source principale, et une corrélation à un degré moindre avec le ^{7}Be et le ^{32}P. Cela signifie que comme eux le ^{210}Po dépend des mêmes facteurs troposphériques de transport et d'élimination.

REMARQUE : L'anticorrélation, notée au paragraphe III.2.B entre les concentrations en ^{210}Pb et la vitesse du vent, s'interprète aisément en considérant la fraction récente de ^{210}Pb formée à partir du radon se dégageant du continent européen. Si l'on suppose le dégagement constant, pour un flux d'ouest abordant les côtes sans être chargé en radon dans les basses couches, la concentration en radon et en ^{210}Pb à une certaine distance de la côte est fonction, en première approximation, du temps de contact avec les terres, donc inversement proportionnel à la vitesse du vent.

En conclusion, si les sources fossiles ou telluriques peuvent, peut-être parfois, tenir une certaine place (zone industrielle, terrains riches en Uranium...), leur effet reste cependant très local. La fraction stratosphérique ne dépasse pas quelques pour cent et peut être en général négligée. Bien que j'ai mis en évidence un effet particulier lors des phénomènes d'orage, cela est très localisé et insensible à grande échelle.

Le ^{210}Pb troposphérique reste donc bien la source principale du ^{210}Po dans la troposphère.

☆ ☆
☆

CHAPITRE V

ETUDE DE LA PRODUCTION DES ^{7}Be ET ^{32}P DANS L'AIR ET DE L'UTILISATION DE LEUR RAPPORT D'ACTIVITE (1)

Les ^{7}Be et ^{32}P sont intéressants, du fait de leurs périodes radioactives (respectivement 53.7 et 14.45 j), pour étudier certains phénomènes atmosphériques. On a ainsi envisagé d'utiliser le rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ pour caractériser, dans la troposphère, l'air d'origine stratosphérique (LAL et al., 1958 ; PETERS, 1959 ; RAMA & HONDA, 1961 ; RAMA, 1963), pour déterminer des temps de séjour (BHANDARI et al., 1970 ; MARENCO & FONTAN, 1972-b ; LAL et al., 1960) ou pour estimer des coefficients d'échange troposphériques (HARTWIG & SITTKUS, 1972).

Nous avons vu précédemment (cf. chapitre III) que les variations d'activité des ^{7}Be et ^{32}P, dans l'air des basses couches, dépendaient beaucoup des phénomènes de lessivage et que les expériences de simulation numérique permettaient de retrouver -au moins qualitativement- les variations constatées expérimentalement. On a noté par contre un désaccord prononcé pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$ entre les valeurs expérimentales moyennes (de l'ordre de 30) et les résultats théoriques (de l'ordre de 50) donnés par les modèles en régime stationnaire dans des conditions moyennes de lessivage et d'échanges verticaux. D'autre part, la variation de ces paramètres, en régime stationnaire, ne permet pas d'expliquer la variation périodique, obtenue expérimentalement pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$, passant de 38-40 en hiver à environ 24 en automne.

J'ai donc recherché, d'une part, si une mésestimation des taux de production n'était pas responsable des désaccords enregistrés et étudié, d'autre part, au moyen d'expériences de simulation en régime dépendant du temps, quelle pouvait être l'influence directe de certains phénomènes sur la valeur du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$.

I. ETUDE DE LA PRODUCTION DES ELEMENTS COSMOGENIQUES

I.1 - Rappel des travaux antérieurs

La formation des éléments cosmogéniques a fait l'objet de nombreuses études (BENIOFF, 1956 ; PETERS, 1959 ; LAL et al., 1958 ; ROCHESTER, 1962). LAL a ainsi déterminé, à partir du taux d'étoiles-nucléaires F et du rendement de spallation Ri pour chaque élément i, les variations des taux de production Qi avec la latitude et l'altitude ($Qi = F.Ri$). Ces taux restent entre eux dans un rapport fixe (Ri constant) et augmentent avec la latitude et surtout l'altitude (cf. chapitre III).

Les efficacités Ri initialement calculées (LAL et al., 1958) étaient de l'ordre de 4.2×10^{-2} pour le ^{7}Be et de 2.46×10^{-4} pour le ^{32}P. Ces valeurs ont toutefois été souvent reconsidérées (augmentation de l'efficacité du ^{32}P) en raison notamment des rapports minima d'activité $(^{7}Be/^{32}P)_{min}$ expérimentalement constatés dans les précipitations. On a en effet :

(1) *L'essentiel de ce travail a fait l'objet d'une publication à paraître dans la revue "Tellus" (MARENCO & FONTAN, 1974-b).*

$$\frac{Q_{Be}}{Q_P} = \frac{R_{Be}}{R_P} \leq \left(\frac{\lambda_P}{\lambda_{Be}}\right).\left(\frac{^7Be}{^{32}P}\right)_{min}$$

Le tableau V.1 résume les divers rapports considérés.

II.2 - Etude des taux de production

Les taux de production Qi dépendent donc de deux facteurs : le taux d'étoiles nucléaires F, et le rendement de spallation Ri qui est fonction de l'élément considéré. Le taux F est déduit des flux de particules à différents niveaux, assez bien connus dans la haute troposphère et la stratosphère (SIMPSON, 1951 ; MEYER & SIMPSON, 1955 ; SOBERMAN, 1956); dans la basse troposphère, les déterminations sont plus rares et l'on extrapole en général les courbes obtenues en altitude. J'ai essayé, dans les modèles de simulation, de modifier de manière arbitraire la répartition verticale du facteur F, en diminuant notamment le gradient dans la basse troposphère ; il est possible d'obtenir des valeurs plus faibles du rapport $^7Be/^{32}P$, en particulier dans les basses couches, mais la modification à apporter au profil vertical de F est si importante qu'elle est très peu probable. Il semble, en l'absence d'éléments nouveaux et après les études très sérieuses de LAL & al. (1958) et de PETERS (1959), qu'il ne soit pas possible de remettre en question le taux d'étoiles nucléaires F. Les rendements de spallation Ri sont par contre plus incertains, étant donné la difficulté de réaliser des mesures absolues, et le rapport des taux de production a été souvent revisé comme nous l'avons vu. La dernière valeur considérée est de l'ordre de 60, ce qui correspond à un rapport minimum d'activité de 16. Lorsque l'on étudie les rapports $^7Be/^{32}P$ obtenus dans le monde (air et pluie), on trouve toute une gamme de variation (figure V.1). On constate que de nombreux auteurs ont obtenu des rapports d'activité inférieurs à 16. Il faut toutefois tenir compte de la durée des prélèvements et de leur représentativité. En effet :

- plus le prélèvement dans l'air est court et plus on a de chance d'obtenir des rapports $^7Be/^{32}P$ proches de la valeur minimale ;
- les pluies, même analysées individuellement ne sont pas spécialement représentatives d'un échantillonage de courte durée, étant donné le temps d'existence des nuages ;
- enfin, on peut avoir des erreurs de mesure pour les valeurs extrêmes du rapport $^7Be/^{32}P$.

Auteurs	Année	Q_{Be}/Q_P
LAL	1958	170
PETERS, GOEL	1959	100
RAMA	1960	180
LAL & ARNOLD	1960	110
LAL & RAMA	1960	60
RAMA	1961	100
ROCHESTER ; WALTON	1962	100
LAL	1963	100
RAMA	1963	100
BHANDARI	1970	60

TABLEAU V.1 - *Différents rapports de taux de production considérés dans la littérature.*

On constate que les valeurs les plus faibles de ce rapport sont obtenues à Vilnius (prélèvements de 3 jours), au Spitzberg (prélèvements de 1 jour) et à Toulouse (prélèvements de 1 à 4 jours). La valeur de 10, pour le rapport minimum d'activité $^7Be/^{32}P$, semble être la plus probable, bien que des valeurs inférieures aient parfois été trouvées ; leur fréquence est cependant bien plus faible, et elles sont à considérer avec réserve.

Les résultats obtenus par REITER et al. (1970) par exemple, tout en présentant une dispersion comparable aux autres, sont en moyenne plus faibles et présentent surtout de telles valeurs exceptionnelles (2 à 8) du rapport $^7Be/^{32}P$. Il est possible d'attribuer la faible valeur moyenne (20) au fait que les mesures sont réalisées en altitude, à 3000 m, où les rapports doivent être plus faibles comme le montrent les modèles en régime stationnaire. Cependant, les très faibles valeurs peuvent être discutées. Etant donné la période de mesures (Novembre 1969 à Mars 1970), il ne faut pas exclure la possibilité d'une formation artificielle de ^7Be et surtout de ^{32}P, à la suite des essais chinois du 29 Septembre 1969, amenant de plus faibles valeurs du rapport $^7Be/^{32}P$. Il est en effet à remarquer que les très faibles valeurs du rapport $^7Be/^{32}P$ sont obtenues au début de la période de mesure et coïncident souvent avec des pics d'activité de produits de fission. Il faut d'autre part noter que les rendements chimiques des analyses semblent ne pas avoir été mesurés systématiquement ; or j'ai, en ce qui me concerne, noté dans mes analyses des variations parfois importantes de ces rendements.

La valeur minimale la plus probable, se

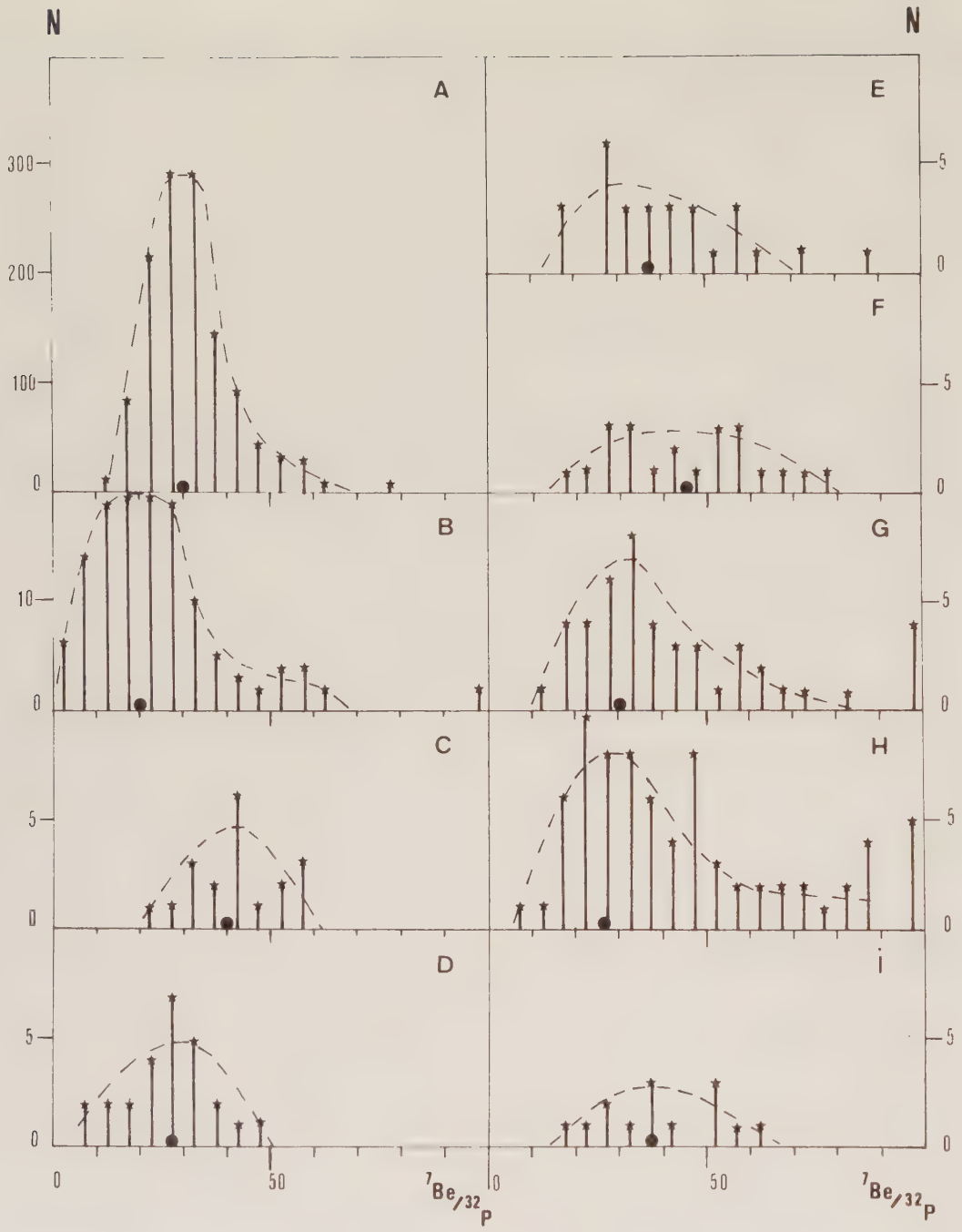

FIGURE V .1 - *Répartition statistique des rapports d'activité $^{7}Be/^{32}P$:*

A/ Toulouse (air) (prélèvements 1 à 4 j) (MARENCO & FONTAN, 1974-a) ;
B/ Spitzberg (air 3000 m) (prélèvements 1 j) (REITER et al., 1970) ;
C/ Bern (air) (prélèvements 7 j) (AEGERTER et al., 1966) ;
D/ Vilnius (air) (prélèvements 3 j) (LUYANAS et al., 1970) ;
E/ Bombay-Kandala (pluie) (BHANDARI et al., 1970) ;
F/ Indes (air en altitude) (RAMA & HONDA, 1961) ;
G/ Bombay-Kodaikanal (pluie) (RAMA, 1960 ; LAL et al., 1960 ; PETERS, 1959) ;
H/ Toulouse (pluie) (LACOMBE, 1968) ;
I/ Westwood (pluie) (WALTON & FRIED, 1962).

retrouvant à des périodes diverses et pour des mesures d'origines distinctes, semble être de l'ordre de 10 ; elle correspond à un rapport des taux de production de 37. Le rapport moyen $^{7}Be/^{32}P$, obtenu avec les modèles dans les basses couches, passe alors de 50 à 31, ce qui est plus compatible avec les résultats expérimentaux. Etant donné les résultats donnés par les

modèles (^{32}P trop faible par rapport à la réalité), il semble à priori plus juste de conserver la valeur de l'efficacité pour le ^{7}Be, qui concorde bien avec les mesures et les bilans, et de relever celle du ^{32}P qui devient ainsi : $R_P = 1.13 \times 10^{-3}$.

REMARQUE : Les faibles valeurs du rapport $^{7}Be/^{32}P$ obtenues à Toulouse ne sont pas imputables à une contamination en ^{32}P d'origine artificielle. Leur fréquence est la même, que l'on soit ou non en période d'essais nucléaires, et l'on ne constate en particulier aucune relation entre ce rapport et la présence de produits de fission à courte et moyenne périodes.

II. SIMULATION NUMERIQUE EN REGIME DEPENDANT DU TEMPS

La modification du rapport des taux de production pose cependant le problème d'expliquer les fortes valeurs du rapport $^{7}Be/^{32}P$ (répartition entre 10 et 60), souvent supérieures à la valeur d'équilibre (37). LAL et al. (1958) ont montré qu'il était possible d'avoir des rapports d'activité $^{7}Be/^{32}P$ bien supérieurs à la valeur d'équilibre, en considérant une masse d'air d'origine stratosphérique évoluant dans la troposphère. Or, nous avons vu précédemment (cf. chapitre III) que les descentes stratosphériques, bien que possibles, n'avaient pas de contribution importante sur les variations de concentration des ^{7}Be et ^{32}P et ne pouvaient expliquer la fréquence des fortes valeurs observées, notamment dans les basses couches (absence en particulier de corrélation entre les rapports $^{90}Sr/^{7}Be$ et $^{7}Be/^{32}P$).

II.1 - Modèles de simulation

J'ai essayé de voir, par des expériences sur modèles, si des phénomènes purement troposphériques pouvaient amener, en régime dépendant du temps, des variations du rapport $^{7}Be/^{32}P$ comparables à celles envisagées par LAL. En effet, le gradient accusé de la répartition verticale des taux de production ainsi que la différence d'évolution dans le temps des ^{7}Be et ^{32}P (en raison de leurs périodes différentes) font que toute rupture de l'état d'équilibre à un niveau donné peut se traduire ensuite, lors du retour à l'équilibre, par une variation importante du rapport $^{7}Be/^{32}P$.

Les modèles utilisés sont ceux présentés dans le chapitre VI. Ils permettent d'étudier les phénomènes en régime stationnaire ou dépendant du temps. En particulier, les phénomènes de lessivage (entre 2 et 6 km) sont simulés soit par un coefficient en régime stationnaire, soit en annulant les concentrations dans la zone de lessivage en régime transitoire ; enfin, on considère la répartition verticale des taux de production des ^{7}Be et ^{32}P correspondant au 40° de latitude.

Les expériences de simulation, réalisées en régime dépendant du temps, partent comme conditions initiales des profils verticaux en régime stationnaire (conditions moyennes) et l'on étudie, après simulation des phénomènes, l'évolution dans le temps du rapport $^{7}Be/^{32}P$ dans les basses couches.

II.2 - Expériences sur modèles

A. PHENOMENES DE LESSIVAGE (figure V.2)

La simulation d'un lessivage de plusieurs jours, dans la zone de 2 à 6 km, entraîne une diminution rapide du rapport $^{7}Be/^{32}P$ dans les basses couches, suivie d'une augmentation plus rapide que l'évolution normale (due à la production continue des éléments) car il s'y ajoute la contribution des couches supérieures, relativement plus importante en ^{7}Be qu'en ^{32}P. On note cependant que le rapport $^{7}Be/^{32}P$ ne dépasse pas la valeur du rapport des taux de production et que par ailleurs la valeur minimale, atteinte

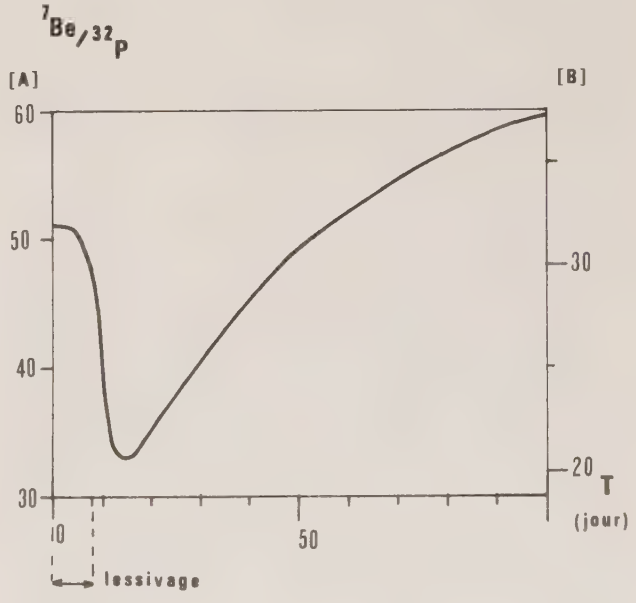

FIGURE V.2 - *Simulation numérique : influence d'un lessivage (durée : 8 j). Evolution en fonction du temps du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air des basses couches (K_z troposphérique : 6 m^2/s). (A/ Echelle conventionnelle (Q_{Be}/Q_P=60); B/ Echelle modifiée (Q_{Be}/Q_P = 37)).*

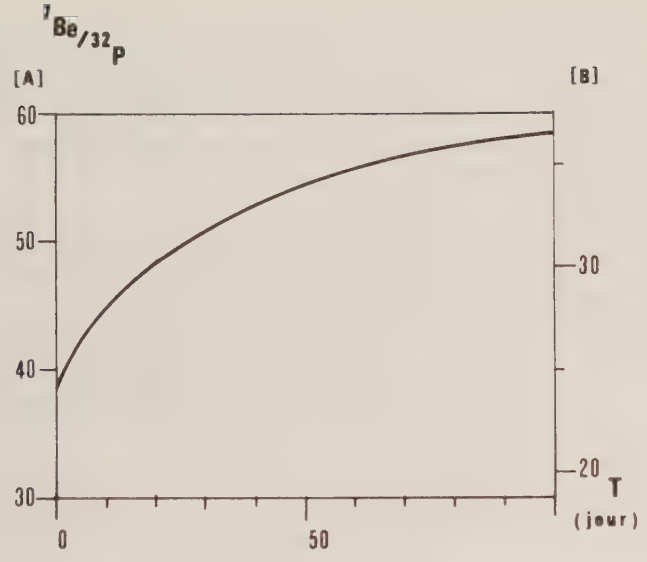

FIGURE V.3 - *Simulation numérique : influence d'un changement de stabilité. Evolution en fonction du temps du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air des basses couches (K_z troposphérique : 3 m^2/s). (A/ Echelle conventionnelle (Q_{Be}/Q_P=60); B/ Echelle modifiée (Q_{Be}/Q_P = 37)). (Conditions initiales : K_z = 20 m^2/s ; Λ_l = 1/30 j^{-1}).*

dans les jours suivant le lessivage, reste relativement élevée. Les phénomènes de lessivage ne permettent donc d'expliquer, ni les rapports supérieurs à la valeur d'équilibre, ni les faibles valeurs constatées dans les basses couches, dans le cas où l'on considère l'ancien rapport de 60 des taux de production.

B. VARIATION DU COEFFICIENT D'ECHANGE TROPOSPHERIQUE

Les résultats obtenus en régime stationnaire montrent que les activités des ^{7}Be et ^{32}P sont supérieures aux valeurs d'équilibre locales (déduites des taux de production), dans la troposphère inférieure (0 à 4 km), et que la tendance s'inverse dans la troposphère supérieure. Lorsque le coefficient d'échange est élevé, les gradients verticaux sont faibles et les différences précédentes sont d'autant plus accusées. Lorsque l'on simule sur modèle (figure V.3) une stabilisation de la troposphère, succédant à un mélange important, on vérifie bien que le rapport $^{7}Be/^{32}P$ dans les basses couches augmente en fonction du temps. Cependant, l'évolution est relativement lente et les rapports ne dépassent pas, ici non plus, le rapport des taux de production.

C. VARIATION RAPIDE DE LA HAUTEUR DE TROPOPAUSE

Je ne traiterai pas ici de la montée de la tropopause, donnant lieu à des introductions stratosphériques (étudié par LAL), étant donné leur faible contribution dans les basses couches en ^{7}Be et ^{32}P. On peut inversement envisager le cas d'une baisse rapide de la hauteur de tropopause ; la production troposphérique diminue et les activités initialement présentes décroissent jusqu'au nouvel état d'équilibre. On vérifie avec les modèles que l'on a bien alors une augmentation du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$, mais celle-ci reste faible (10 %).

D. PHENOMENES DE SUBSIDENCE

Les phénomènes de divergence ou de convergence, se produisant à moyenne et grande échelle dans la troposphère, provoquent des déplacements verticaux de l'air dont la vitesse peut atteindre quelques cm/s. Les subsidences, résultant de phénomènes de divergence, ont ainsi un effet analogue à celui d'une descente stratosphérique, en amenant dans les couches moyennes ou inférieures de la troposphère des concentrations bien supérieures à l'équilibre local de production, mais sans contribution relative importante en produits d'origine stratosphérique.

J'ai étudié ce phénomène pour diverses conditions de stabilité verticale dans la troposphère ; pour cela j'ai simulé, sur un modèle ayant atteint un régime d'équilibre indépendant du temps, le résultat final d'une subsidence de quelques jours -donnant lieu à un déplacement maximum vers 5 km d'altitude (abaissement de 3 km) et diminuant rapidement vers 0 dans la haute et basse troposphère- et étudié l'évolution, en fonction du temps, du rapport $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air des basses couches (figure V.4). On constate une augmentation assez rapide (quelques dizaines de jours) et importante de ce rapport, l'effet étant d'autant plus accusé que la stabilité de la troposphère est élevée. On note que le rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dépasse en général la valeur du rapport des taux de production. Lorsque l'on diminue l'amplitude de la subsidence les variations sont encore importantes, et lorsqu'on l'augmente on atteint rapidement des rapports élevés, pouvant être par exemple supérieurs à 100 pour Kz = 3 m^2/s, avec la nouvelle valeur (37) du rapport des taux de production.

REMARQUE : Il est également possible d'étudier l'effet des phénomènes de convergence amenant,

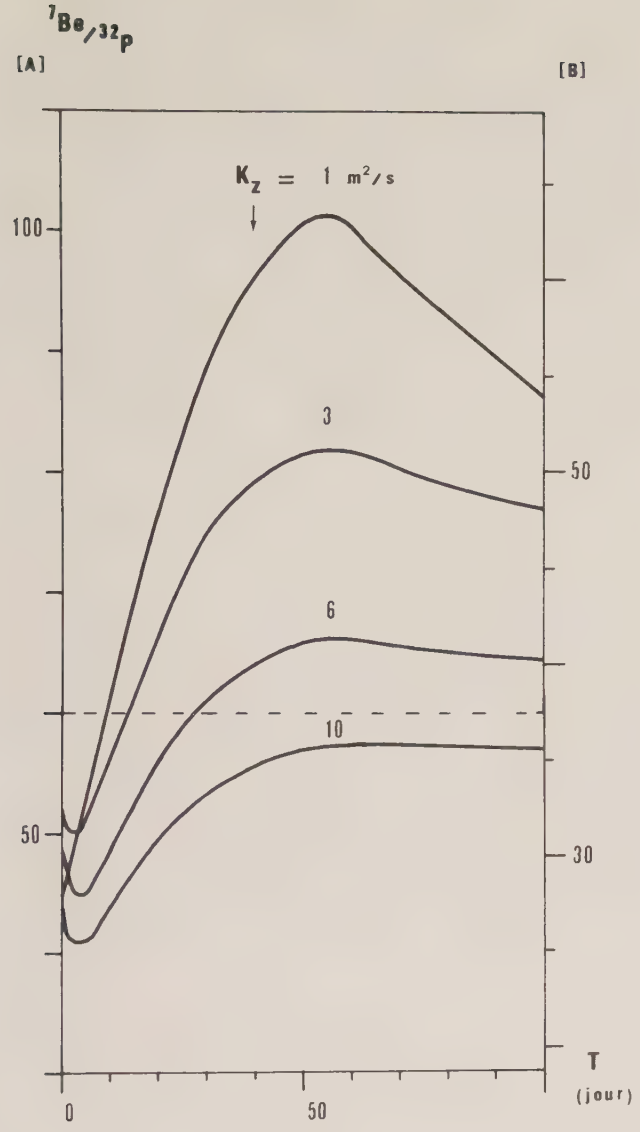

FIGURE V.4 - *Simulation numérique : influence d'une subsidence. Evolution en fonction du temps du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air des basses couches (pour diverses valeurs de K_z troposphérique). (A/ Echelle conventionnelle (Q_{Be}/Q_P = 60) ; B/ Echelle modifiée (Q_{Be}/Q_P = 37).*

inversement, une élévation de l'air. On constate la diminution du rapport $^{7}Be/^{32}P$, mais la variation reste assez limitée .

III. DISCUSSION

Lorsque l'on désire utiliser le rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ pour étudier certains phénomènes atmosphériques, il est indispensable de connaître le rapport exact des taux de production des ^{7}Be et ^{32}P. L'étude de résultats expérimentaux de sources diverses montre que l'efficacité du ^{32}P semble avoir été sous-estimée et que le rapport des taux de production (Q_{Be}/Q_P) est vraisemblablement de l'ordre de 37, plutôt que de 60. En effet, s'il est possible, comme nous l'avons vu, d'expliquer les valeurs élevées du rapport $^{7}Be/^{32}P$, il est impossible -en l'absence de formation artificielle ou d'incertitude importante sur la valeur du rapport- d'expliquer autrement les valeurs inférieures à la limite minimale théorique obtenues pour ce rapport. Cette modification se justifie d'autre part lorsque l'on considère les résultats du rapport $^{7}Be/^{32}P$, donnés par les modèles de simulation (Q_{Be}/Q_P), systématiquement trop élevés par rapport aux valeurs expérimentales moyennes.

Les expériences de simulation sur modèles montrent l'influence importante des déplacements verticaux sur la variation du rapport $^{7}Be/^{32}P$. On observe ainsi une bonne corrélation entre le rapport $^{7}Be/^{32}P$ et les situations anticycloniques, ce qui peut s'expliquer par les phénomènes de descente de l'air au sein de ces masses d'air.

Un exemple particulièrement intéressant de variation du rapport $^{7}Be/^{32}P$ est observé durant l'hiver 1967-1968 (figure V.5). J'ai porté les valeurs journalières du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ mesuré à Toulouse dans l'air au niveau du sol ; on obtient des variations très irrégulières, les valeurs augmentant en moyenne au fur et à mesure jusqu'en janvier 1968. J'ai porté également la courbe des températures journalières à Toulouse (en négatif), en indiquant (zones ombrées) les périodes de passage des masses d'air arctiques ou polaires (données par une analyse de la nature et de l'origine des masses d'air arrivant à Toulouse). On constate une très bonne correspondance entre les fortes valeurs du rapport $^{7}Be/^{32}P$ et la présence de ces masses d'air. Il est possible de donner une interprétation de ces variations, grâce aux études précédentes. Les masses d'air arctiques (ou polaires) sont à l'origine très stables (faibles Kz), ce qui peut permettre au rapport $^{7}Be/^{32}P$ d'atteindre, à la suite de phénomènes tels que des subsidences, des valeurs élevées, supérieures à celles existant dans l'air plus mélangé des latitudes inférieures. Les échanges avec l'air des latitudes moyennes s'effectuent de manière discontinue à travers le front polaire (perturbations). Chaque arrivée d'air arctique (ou polaire) à Toulouse correspond ainsi à un échantillonnage relativement récent (plus ou moins évolué) de la masse d'air arctique. Il est donc logique d'observer une bonne correspondance entre ces masses

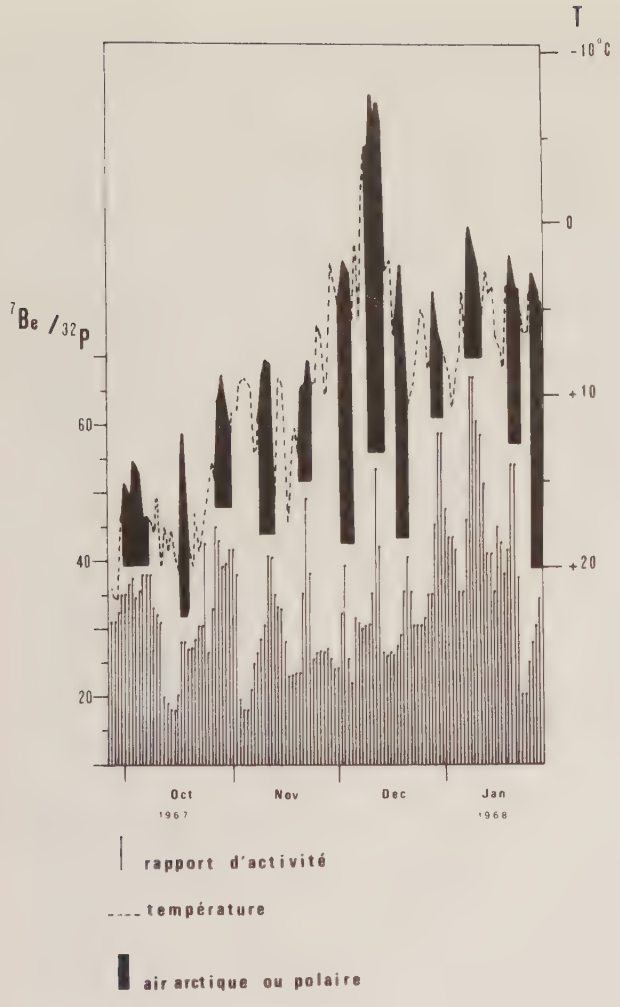

FIGURE V.5 - *Variations du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$, mesuré dans l'air au niveau du sol à Toulouse, comparées à la présence de masses d'air arctiques ou polaires (portées sur la courbe de variation de température).*

d'air et les valeurs élevées du rapport $^{7}Be/^{32}P$. La montée progressive de ces fortes valeurs fait d'ailleurs penser à l'évolution caractéristique, en fonction du temps, de ce rapport dans la masse d'air arctique stable, après des phénomènes tels que des subsidences.

Des exemples analogues de variation se répètent à plusieurs reprises au cours de mes mesures (entre 1966 et 1969) et on observe alors une très bonne corrélation entre le rapport $^{7}Be/^{32}P$ et les masses d'air arctiques ou polaires. En dehors de ces périodes on ne retrouve pas de telle variation. Les études sur modèles en régime stationnaire montrent d'ailleurs que le rapport moyen $^{7}Be/^{32}P$ n'évolue pas beaucoup avec la latitude, car l'influence des lessivages importants (diminution du $^{7}Be/^{32}P$) aux faibles latitudes est compensée par la hauteur élevée de la tropopause (augmentation du $^{7}Be/^{32}P$), les choses étant inversées aux fortes latitudes. La correspondance, existant à certaines périodes seulement entre les valeurs élevées du rapport $^{7}Be/^{32}P$ et les masses d'air arctiques (ou polaires), explique donc que, lorsqu'on considère l'ensemble des résultats, on obtienne une corrélation entre le rapport $^{7}Be/^{32}P$ et ces masses d'air, celle-ci étant cependant bien moins élevée que dans les exemples précédents. Il semble donc finalement que l'air arctique ne présente pas, en temps normal, de rapports $^{7}Be/^{32}P$ très différents de ceux des autres latitudes, mais que les conditions de stabilité qui y règnent permettent, en certaines occasions, à ce rapport d'atteindre des valeurs bien plus élevées qu'ailleurs.

Lorsque l'on fait le point sur l'utilisation du rapport $^{7}Be/^{32}P$, on constate qu'il n'est guère applicable aux études initialement prévues. Nous avons vu en effet que les descentes d'air stratosphérique dans la troposphère n'apportent pas, au niveau du sol, de contribution importante en ^{7}Be et ^{32}P. Nous verrons par ailleurs au chapitre suivant que le rapport $^{7}Be/^{32}P$ se prête mal à la détermination directe des temps de séjour troposphériques, étant donné les surestimations dues à la désintégration plus rapide du ^{32}P. Il semble par contre que ce rapport dépende de manière importante des phénomènes de stabilité et des déplacements verticaux se produisant dans la troposphère.

☆ ☆
☆

TROISIEME PARTIE

TEMPS DE SEJOUR

CHAPITRE VI

ETUDE DU TEMPS DE SEJOUR DES AEROSOLS (1)

Les aérosols en suspension dans l'air sont éliminés au niveau de la troposphère par les précipitations et par dépôt sec au sol. On caractérise leur élimination d'un réservoir donné (atmosphère, tranche d'atmosphère) par la notion de temps de séjour τ, que l'on définit comme étant le rapport entre la teneur du réservoir et les pertes non radioactives par unité de temps. En pratique, le temps de séjour est déterminé au moyen d'indicateurs radioactifs, en éliminant l'influence des pertes par désintégration.

Une certaine controverse s'est développée depuis plusieurs années sur le problème du temps de séjour des aérosols dans la troposphère. Certains auteurs, négligeant l'influence des phénomènes d'échanges verticaux,ont considéré la troposphère comme un réservoir bien mélangé avec un temps de séjour unique pour tous les éléments. Les diverses méthodes utilisées donnant en général des résultats différents, ils en ont conclu soit que les éléments étudiés n'étaient pas utilisables, soit que les résultats étaient faussés et qu'il y avait lieu de corriger les valeurs obtenues. Ils ont ainsi, comme nous l'avons vu au chapitre IV, envisagé par exemple des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'atmosphère, uniquement pour expliquer l'écart entre les temps de séjour déterminés avec les rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$. Or, nous avons vu que cette dernière hypothèse n'était pas vérifiée, tout au moins dans le Sud de la France.

Je pense que l'on a trop tendance en fait à oublier la définition initiale et la signification réelle de la notion de temps de séjour et à vouloir le calculer au moyen de relations simplifiées, dans des conditions où celles-ci sont plus applicables. Il n'est pas possible, en particulier, de négliger les phénomènes d'échanges verticaux et la localisation des processus d'élimination dans la troposphère, et le temps de séjour d'un élément dépend ainsi beaucoup de la position de sa source.

J'ai donc étudié, tout d'abord, l'expression mathématique des temps de séjour en fonction des hypothèses simplificatrices introduites et des conditions envisagées. J'ai ensuite cherché à montrer, en utilisant des modèles numériques simples, les différences entre temps de séjour que peuvent entrainer la prise en considération ou la variation des divers paramètres J'ai enfin précisé la validité et la signification des temps de séjour déterminés expérimentalement, en particulier dans le cas où les hypothèses simplificatrices précédentes ne sont plus applicables.

I. ETUDE THEORIQUE DU TEMPS DE SEJOUR

I.1 - Généralités

La relation mathématique, qui dans un volume donné relie les sources et les pertes, fait aussi intervenir les phénomènes d'échanges. Il n'est pas possible de rendre compte, à la fois et de manière simple, de tous les processus d'échanges verticaux (diffusion moléculaire et turbulente, convection, phénomènes de convergence au niveau des masses d'air...). Comme l'ont

(1) L'essentiel de ce travail a fait l'objet de deux publications dans les revues "Tellus" (MARENCO & FONTAN, 1972-b) et "Journal of Geophysical Research" (MARENCO & FONTAN, 1973).

fait avant moi plusieurs auteurs (JACOBI & ANDRE 1960 ; DAVIDSON et al., 1966 ; MACHTA, 1966 ; KAROL, 1966, 1970 ; SEITZ et al., 1968 ; MACHTA et al., 1970), je simulerai les phénomènes d'échanges en utilisant une équation de diffusion. Cette équation n'est bien sûr qu'une manière très simplifiée de représenter le transport vertical des aérosols dans l'atmosphère, puisqu'elle ne décrit pas, en particulier, les processus intervenant à l'échelle de la circulation générale. Elle est cependant une approximation commode et les coefficients de diffusion utilisés en ce cas sont des coefficients d'échange moyens qui englobent l'ensemble des mouvements verticaux allant de l'échelle moléculaire à celle de la circulation générale. (Je négligerai dans cette étude l'influence des mouvements méridiens sur la répartition verticale des aérosols)

L'équation générale s'écrit, en négligeant les composantes horizontales du coefficient d'échange devant les phénomènes d'advection horizontale :

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \frac{1}{\rho}\frac{\partial}{\partial z}\left(\rho K_z \frac{\partial X}{\partial z}\right) - \left(u_x \frac{\partial X}{\partial x} + u_y \frac{\partial X}{\partial y} + u_z \frac{\partial X}{\partial z}\right)$$

$$+ v_g \frac{\partial X}{\partial z} - (\lambda + \varepsilon\Lambda_1)X + Q \qquad (1)$$

avec :

x, y : coordonnées horizontales

z : altitude

$X = X(x, y, z, t)$: concentration de l'élément par unité de masse d'air

v_g : vitesse de sédimentation

$K_z = K_z(z)$: coefficient d'échange vertical

λ : constante radioactive de l'élément

$\rho = \rho(z)$: masse spécifique de l'air

ε : efficacité de lessivage, fonction du diamètre des aérosols (elle comprend à la fois les phénomènes de lessivage par capture des aérosols au niveau du nuage : "rainout", et par chute de la pluie : "washout" (JUNGE, 1963-b ; STOREBØ, 1965)

u_x, u_y, u_z : composantes de la vitesse du vent

$\Lambda_1 = \Lambda_1(x, y, z, t)$: coefficient de lessivage par voie humide

$Q = Q(x, y, z, t)$: production de l'élément par unité de masse d'air

On fait intervenir le dépôt sec, dans les conditions aux limites, par l'intermédiaire d'une vitesse de déposition β.

On peut en pratique effectuer les simplifications suivantes :

- composante verticale du vent négligeable devant les phénomènes d'échanges verticaux ($u_z = 0$) ;
- diamètre des aérosols constant et voisin de 0.3 μ (aérosols atmosphériques). D'où : $\varepsilon = 1$; seul intervient alors le lessivage par "rainout" car l'efficacité de capture par la chute de la pluie est négligeable pour des particules de cette dimension (JUNGE, 1963-b) ;
- vitesse de sédimentation négligeable étant donné le faible diamètre des aérosols ($v_g = 0$).

I.2 - Expression du temps de séjour

A. HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES

Je ferai dans cette étude l'hypothèse de stratification (valeur constante dans un plan horizontal) pour la production d'une part et le coefficient de lessivage d'autre part :

- $Q = Q(z, t)$
- $\Lambda_1 = \Lambda_1(z, t)$

Ceci entraîne que X, lui aussi, ne dépend que de z et de t ; et l'équation générale se réduit alors à :

$$\frac{\partial X}{\partial t}(z,t) = \frac{1}{\rho(z)}\frac{\partial}{\partial z}\left\{\rho(z)\, K_z(z)\, \frac{\partial X}{\partial z}(z,t)\right\}$$

$$-(\lambda+\Lambda_1(z,t))X(z,t)+Q(z,t) \qquad (2)$$

B. REGIME STATIONNAIRE

On a alors $\partial X/\partial t = 0$. Ceci implique aussi que les autres termes de l'équation *(2)* soient indépendants du temps (on peut prendre pour Q et Λ_1, les valeurs moyennées dans le temps : $Q(z)$ et $\Lambda_1(z)$). D'où :

$$\frac{1}{\rho(z)}\frac{\partial}{\partial z}\left(K_z(z)\,\rho(z)\,\frac{\partial X(z)}{\partial z}\right) - (\lambda+\Lambda_1(z))X(z)+Q(z)=0 \qquad (3)$$

B.a - Bilan global

On peut écrire l'équation *(3)* en explicitant le flux $\phi(z)$ au niveau z :

$$\frac{\partial \phi(z)}{\partial z} - (\lambda+\Lambda_1(z)).\rho(z).X(z)+\rho(z).Q(z) = 0 \qquad (3\text{-}a)$$

et l'intégrer entre les limites verticales z_1 et z_2 du domaine en posant :

$$\overline{Q} = \int_{z_1}^{z_2} \rho(z).Q(z)dz \; ; \; \overline{X} = \int_{z_1}^{z_2} \rho(z).X(z)dz \; ;$$

$$\overline{L} = \int_{z_1}^{z_2} \Lambda_1(z).\rho(z).X(z)dz$$

D'où la relation *(4)* :

$$\phi(z_2) - \phi(z_1) + \overline{Q} - \lambda.\overline{X} - \overline{L} = 0 \qquad (4)$$

On peut envisager différents cas selon les caractéristiques intérieures et frontalières du domaine.

1/ Volume fermé :

On entend par là un domaine clos, où les pertes se produisent uniquement à l'intérieur du volume (pas de dépôt sec par exemple). Les flux aux limites étant nuls, l'équation *(4)* devient :

$$\overline{Q} = \lambda \overline{X} + \overline{L} \qquad (5)$$

Les pertes non radioactives $\overline{P}$ sont égales à $\overline{L}$, d'où :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{\overline{P}} = \frac{\overline{X}}{\overline{L}} \qquad (6)$$

. Dans le cas d'un volume uniforme, c'est-à-dire où Λ_1 est constant et indépendant de z, les pertes $\overline{L}$ sont directement proportionnelles à $\overline{X}$ par l'intermédiaire de Λ_1 ($\overline{L} = \Lambda_1 \overline{X}$) et l'on a :

$$\tau = \frac{1}{\Lambda_1} \qquad (7)$$

(Λ_1 ayant la dimension de l'inverse d'un temps, il est commode d'appeler "temps de lessivage" la quantité $\tau_1 = 1/\Lambda_1$).

On voit donc que dans le cas d'un volume fermé, uniforme, en régime stationnaire, le temps de séjour est unique et égal au temps de lessivage τ_1.

. Dans le cas d'un volume non uniforme (Λ_1 dépendant de z), il n'y a plus de relation simple entre $\overline{X}$ et $\overline{L}$, et le temps de séjour dépend à la fois des caractéristiques du milieu ($K_z(z)$; $\Lambda_1(z)$) et de l'élément considéré (λ ; $Q(z)$).

. - Lorsque le volume est parfaitement mélangé (K_z élevé), la concentration X est indépendante de l'altitude ; le temps de séjour est alors égal à une constante en indépendant de l'élément :

$$\tau = \frac{\int_{z_1}^{z_2} \rho(z)\, dz}{\int_{z_1}^{z_2} \rho(z).\Lambda_1(z) dz} \qquad (8)$$

On voit donc que c'est l'intensité des échanges verticaux qui détermine finalement la variation du temps de séjour avec la source de l'élément considéré.

- On peut envisager le cas d'un élément non radioactif ($\lambda = 0$), ou à très longue période, dont la source est localisée à une altitude h dans le domaine considéré. On définit ainsi dans le volume un temps de séjour partiel $\tau(h)$ relatif à l'altitude de production h. A chaque production $\overline{Q}(h)$, localisée au niveau h, correspond dans le domaine une teneur $\overline{X}(h)$ et on a :

$$\overline{X}(h) = \tau(h) \cdot \overline{Q}(h) \qquad (9)$$

Lorsque l'on considère un élément non radioactif, ayant une production Q(z) dont la distribution avec l'altitude est quelconque, on aura:

$$\overline{Q} = \int_{z_1}^{z_2} \overline{Q}(h)\, dh \qquad (10)$$

On sait que : $\overline{Q} = \overline{L}$ ($\lambda = 0$). Donc :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{\overline{Q}} = \frac{\int_{z_1}^{z_2} \tau(h).\overline{Q}(h).dh}{\int_{z_1}^{z_2} \overline{Q}(h)\, dh} \qquad (11)$$

On voit ainsi que le temps de séjour d'un élément stable (ou à longue période) dans un domaine donné est la somme, pondérée par la production, des temps de séjour partiels dans le domaine et relatifs à chaque niveau de production.

2/ Volume ouvert :

. Dans le cas d'une couche non étanche, les flux $\phi(z_1)$ et $\phi(z_2)$ de l'équation *(4)* sont différents de zéro. On peut poser : $\phi_s = \phi(z_2)$ et $\phi_i = -\phi(z_1)$ (ϕ_s et ϕ_i étant les flux résultants aux limites supérieures et inférieures), afin d'avoir la même convention de signe ; les flux positifs correspondant à une entrée d'élément dans le volume. D'où :

$$\overline{Q} = \overline{X} + \overline{L} - \phi_s - \phi_i$$

Il faut considérer deux cas pour les flux ϕ (ϕ_s ou ϕ_i) :

- ϕ positif. Il s'ajoute alors à $\overline{Q}$, et on a la source totale $\overline{S}$:

$$\overline{S} = \overline{Q} - \lambda\overline{X} + \phi = \overline{Q} - \lambda X + |\phi| \qquad (12)$$

- ϕ négatif. Il s'ajoute alors à $\overline{L}$, et on a les pertes totales $\overline{P}$:

$$\overline{P} = \overline{L} - \phi = \overline{L} + |\phi| \qquad (13)$$

On peut réunir ces deux alternatives en une seule formule :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{0.5\ (\overline{S}+\overline{P})} \qquad (14)$$

c'est-à-dire :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{0.5\ (\overline{Q} - \lambda\overline{X} + |\Phi_S| + |\Phi_i|)} \qquad (15)$$

. Dans le cas d'un ensemble de n couches adjacentes (i), on a :

$$\tau_i = \frac{\overline{X}_i}{\overline{P}_i} \qquad \text{soit } \overline{X}_i = \tau_i . \overline{P_i}$$

Si l'on considère la couche totale formée par la réunion de toutes ces couches :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{\overline{P}} \qquad \text{soit } \overline{X} = \tau . \overline{P}$$

On a :

$$\overline{X} = \sum_{i=1}^{n} \overline{X}_i = \sum_{i=1}^{n} \tau_i . \overline{P}_i$$

On en tire donc que :

$$\tau = \frac{\sum_{i=1}^{n} \tau_i . \overline{P}_i}{\overline{P}} \qquad (16)$$

On voit qu'en première approximation (si les flux échangés entre les diverses couches sont relativement limités) le temps de séjour global τ dans l'ensemble des couches est la somme, pondérée par les pertes, des temps de séjour dans chacune des couches.

B.b - Signification de la notion de temps de séjour

La notion de temps de séjour a été introduite au moyen d'équations de bilans, comme le rapport entre la teneur et les pertes, c'est à dire en régime stationnaire :

$$\tau = \frac{\overline{X}}{\overline{P}} = \frac{\overline{X}}{\overline{S}}$$

Il est cependant possible de considérer le problème d'un point de vue statistique, en introduisant les distributions d'âge des particules.

BOLIN a montré les relations existant entre les âges moyens des particules et le temps de séjour défini conventionnellement (BOLIN & RHODE, 1973).

Il a considéré ainsi le cas général d'un domaine en régime stationnaire. Chaque particule peut être caractérisée par son âge θ (temps écoulé depuis son entrée ou sa formation dans le volume). On peut classer les particules, contenues dans le volume ou quittant le volume par unité de temps, selon des fonctions cumulatives, $X(\theta)$ et $P(\theta)$ respectivement, définissant les masses de l'élément, contenues ou sortant, d'âge inférieur ou égal à θ. Les masses totales étant $\overline{X}$ et $\overline{P}$, on a évidemment :

$$\theta \to \infty \qquad \lim \begin{cases} X(\theta) = \overline{X} \\ P(\theta) = \overline{P} \end{cases}$$

A partir de ces deux fonctions on peut définir les fonctions de distribution des masses, contenues ou sortant par unité de temps, en fonction de l'âge : $\Psi(\theta)$ et $\pi(\theta)$ respectivement. Elles répondent aux conditions :

$$\int_0^\infty \{ {\Psi(\theta) \atop \pi(\theta)} \}\ d\theta = 1$$

et l'on a :

$$\psi(\theta) = \frac{1}{\overline{X}} . \frac{dX(\theta)}{d\theta} \ ; \ \pi(\theta) = \frac{1}{\overline{P}} . \frac{dP(\theta)}{d\theta}$$

ou encore :

$$X(\theta) = \overline{X} \int_0^\theta \Psi(u)\ du \ ; \ P(\theta) = \overline{P} \int_0^\theta \pi(u) du$$

La relation existant entre $X(\theta)$ et $P(\theta)$ étant :

$$\overline{P} - P(\theta) = \overline{X} \ . \ \Psi(\theta) = \frac{dX(\theta)}{d\theta}$$

on en tire que :

$$\theta \to 0 \qquad \lim \Psi(\theta) = \Psi(0) = \frac{\overline{P}}{\overline{X}}$$

et :

$$\pi(\theta) = - \frac{\overline{X}}{\overline{P}} . \frac{d\Psi(\theta)}{d\theta}$$

On peut alors définir deux sortes d'âges moyens:

- l'âge moyen des particules contenues dans le volume τ_a :

$$\tau_a = \int_0^\infty \theta . \ \Psi(\theta)\ d\theta = \frac{1}{\overline{X}} \int_0^\infty \theta . \ dX(\theta)$$

- l'âge moyen des particules quittant le volume τ_t :

$$\tau_t = \int_0^\infty \theta . \ \pi(\theta)\ d\theta$$

Il est facile de montrer, à partir des relations précédentes, que : $\tau_t = \overline{X}/\overline{P}$. On voit donc que le temps de séjour, en régime stationnaire, n'est pas autre chose que l'âge moyen des particules quittant le volume.

Quant à l'âge moyen τ_a, il est en général différent de τ_t (pouvant être supérieur ou inférieur selon les cas). Les deux âges moyens τ_a et τ_t ne sont égaux que dans le cas où les fonctions de distributions sont identiques et

donc de forme exponentielle (cas d'un volume fermé uniforme par exemple).

C. REGIME NON STATIONNAIRE

Dans le cas du régime non stationnaire, il faut considérer l'équation *(2)*. Le temps de séjour en ce cas dépend non seulement de la variation spatiale des facteurs considérés précédemment (K_z, Q, Λ_1) mais aussi de leur variation dans le temps, ainsi que des conditions initiales. La notion de temps de séjour, introduite au moyen d'une simple relation de bilans, devient alors extrêmement variable et n'a plus d'intérêt réel dans le cas général.

Cas particuliers :

1. On peut considérer le cas simplifié d'un réservoir fermé, uniforme (Λ_1 constant dans le temps et dans l'espace), rempli à l'instant initial mais où la production est ensuite nulle. L'équation *(2)* se réduit alors, en exprimant les échanges verticaux sous la forme du flux, à :

$$\frac{\partial X(z,t)}{\partial t} = \frac{1}{\rho(z)} \cdot \frac{\partial \phi(z)}{\partial z} - (\lambda+\Lambda_1).X(z,t) \quad (2-a)$$

En intégrant dans le domaine, et en tenant compte du fait que les flux aux limites sont nuls, il vient :

$$\frac{\partial \overline{X}(t)}{\partial t} = -(\lambda+\Lambda_1).\overline{X}(t)$$

(avec $\overline{X}(t)$: contenu du réservoir)

D'où :

$$\overline{X}(t) = \overline{X}_o.e^{-(\lambda+\Lambda_1)t}$$

(avec $\overline{X}_o$ contenu du réservoir à l'instant initial).
Les pertes non radioactives par unité de temps $\overline{P}(t)$ sont égales à :

$$\overline{P}(t) = -\Lambda_1.\overline{X}(t)$$

D'où :

$$\tau = \frac{1}{\Lambda_1}$$

On retrouve le même résultat qu'en régime stationnaire. Le temps de séjour est constant et égal au temps de lessivage.
(Physiquement il correspond, pour un élément stable ou à longue période, au temps au bout duquel la teneur initiale est divisée par un facteur e).

2. On peut considérer également le cas d'un réservoir, rempli à l'instant initial, sans pertes ni production dans le volume (Λ_1 = 0 ; Q = 0) avec une fuite à sa limite inférieure. L'intégration de l'équation *(2)* donne :

$$\frac{\partial \overline{X}(t)}{\partial t} = -\phi_i(t) - \lambda.\overline{X}(t)$$

On peut exprimer la fuite par l'intermédiaire d'une vitesse de fuite v, à un niveau de référence voisin de la limite :

$$\phi_i(t) = v.X_o(t)$$

(avec : $X_o(t)$ concentration volumique au niveau de référence).

On peut poser :

$$X_o(t) = \alpha(t).\overline{X}(t)$$

Au bout d'un certain temps, on atteint un régime d'équilibre, et α (t) tend vers une constante α. D'où :

$$\frac{d\overline{X}(t)}{dt} = \alpha.v.\overline{X}(t) - \lambda\overline{X}(t)$$

et : $\overline{X}(t) = \overline{X}_o.e^{-(\alpha v+\lambda)t}$

On a alors :

$$\tau = \frac{1}{\alpha.v}$$

Donc, après un certain temps de stabilisation, le temps de séjour devient constant et ne dépend que des phénomènes de fuite hors du domaine. (Ici aussi, pour un élément stable ou à longue période, le temps de séjour correspond physiquement au temps au bout duquel la teneur est divisée par un facteur e. Mais en ce cas, il varie au début dans le temps avant de se stabiliser).

Ce cas est important en pratique, car il correspond aussi bien à la disparition des produits de fission de la stratosphère qu'à celui des aérosols marins dans la couche limite planétaire au-dessus des continents.

I.3 - Conclusion

La notion de temps de séjour est donc une notion de bilan qui, bien qu'intéressante à considérer dans certains cas particuliers du régime non stationnaire, n'a de signification réelle qu'en régime stationnaire et pour un domaine stratifié. Le temps de séjour correspond alors à l'âge moyen des particules quittant le volume.

On constate alors, qu'en raison des phénomènes d'échanges verticaux, il dépend en général non seulement des caractéristiques du milieu mais aussi de l'élément considéré (principale-

ment par la position de sa source vis-à-vis des phénomènes d'élimination), sauf dans le cas d'un domaine fermé homogène ou uniforme.

Les réservoirs naturels (troposphère, couche troposphérique, stratosphère) peuvent se ramener à un des cas étudiés précédemment, mais il est nécessaire, pour calculer les temps de séjour, d'utiliser les relations mathématiques relatives aux domaines étudiés et de ne pas interpréter ou étendre sans précautions les résultats obtenus avec divers éléments.

II. TRAVAUX ANTERIEURS

On a généralement utilisé les éléments radioactifs naturels ou artificiels, contenus dans l'atmosphère, pour déterminer expérimentalement les temps de séjour.

II.1 - Temps de séjour dans la stratosphère

A. RESULTATS

Les essais nucléaires ont introduit dans la stratosphère des quantités importantes de produits de fission et de nombreuses recherches ont été menées pour déterminer les contenus stratosphériques et la vitesse d'élimination de ces produits.

Les injections étant de type discontinu, on peut considérer que l'on est alors dans le cas d'un réservoir en régime non stationnaire avec une fuite à la limite inférieure (cf. étude théorique : § I.2-C, Cas particulier 2). Après un temps de stabilisation (diffusion des éléments dans le volume, sédimentation des grosses particules), la décroissance du réservoir suit une loi exponentielle et l'on détermine le temps de séjour d'après la pente de la courbe.

On a utilisé pour ces déterminations :

- les produits de fission, à moyenne et longue périodes, injectés dans la moyenne stratosphère (^{90}Sr, ^{54}Mn, ^{95}Zr) ou dans la mésosphère à des altitudes supérieures à 100 km (^{102}Rh, ^{109}Cd)
- le ^{238}Pu provenant de la rentrée accidentelle dans l'atmosphère et de la désintégration dans la haute stratosphère (40 à 60 km) d'un SNAP-9A en 1964 ;
- ainsi que des produits formés artificiellement par les explosions nucléaires (^{22}Na, ^{14}C) ou naturellement par les rayonnements cosmiques (^{22}Na, ^{7}Be).

Le tableau VI.1 présente quelques-unes des déterminations du temps de séjour dans la stratosphère, parmi les plus caractéristiques.

On constate que le temps de séjour augmente avec l'altitude d'injection -jusqu'à plusieurs années pour des éléments introduits dans la mésosphère- et que les valeurs de τ, dans l'ensemble de la stratosphère, varient entre 1 et 2 ans selon les déterminations.

Auteur	Année	Méthode	Formation	Période de mesure	Nature de la mesure	τ	Remarques
BHANDARI	1966	^{7}Be, ^{22}Na	(natur.& arti.1962)	1960-64	mesures stratosphériques	20 mois 12 mois	(0-30°) (30-70°) } zone : 18-20km
FEELY	1966	^{90}Sr, ^{54}Mn ^{14}C artif.	1961 - 62 ---------	1963-64 -------	Bilan strat. ----------	14.5mois 26 mois	} différences expliquées par vitesse chute sup. des prod. de fission
FABIAN	1968	^{90}Sr	1961 - 62	1964-67	mesures pluies	19 mois	
TELEGADAS	1968	^{90}Sr	1961 - 62	1963-67	Bilan strat.	15 mois	
KREY (et al.)	1969	^{95}Zr	1967	Nov67-Jun 68 Jun - Déc 68	Bilan strat. ----------	7 mois 25 mois	} (τmoyen 12 mois) dif. expliquée par τ plus faible en-dessous de 20 km
LEIPUNSKII	1970	^{102}Rh, ^{109}Cd ^{238}Pu	1958, 62, I964	1964-67 -------	Dépôt cumulé au sol	14 ans 4 ans	(τau-dessus 21 km) injection à H>100km, injection à 40-60km
KLEINMAN	1971	^{238}Pu	1964	1967-70	Bilan strat.	20 mois	Injection à 40-60km
BA CUONG	1971	^{90}Sr	1961 - 62	1963-66	Dépôt pluies	12.5mois	

TABLEAU VI.1 : *Déterminations expérimentales du temps de séjour stratosphérique* τ .

B. DISCUSSION

J'ai envisagé lors de l'étude théorique le cas d'une source stratifiée et discontinue (injection à l'instant initial) située dans le domaine, et d'une fuite également stratifiée par la limite inférieure. Nous avons vu qu'il était de plus nécessaire d'arriver à l'état d'équilibre pour obtenir un temps de séjour constant dans le temps et indépendant des éléments considérés.

Or, l'atmosphère et les différents traceurs utilisés ne correspondent pas tout à fait à ces conditions :

- les éléments ne sont injectés que sur un axe vertical (colonne) ;
- ils peuvent d'autre part être introduits en dehors du domaine considéré (mésosphère) ;
- les fuites à travers la tropopause varient dans le temps et dans l'espace (maximales au printemps et aux latitudes moyennes) ;
- les phénomènes de sédimentation peuvent prendre une importance considérable, étant donné les faibles densités des hautes couches.

La période de stabilisation sera donc relativement longue (dispersion horizontale et verticale) et il faudra considérer la stratosphère dans son ensemble, en suivant l'évolution annuelle des contenus, pour éliminer l'influence de la variation de la fuite.

Les résultats expérimentaux reflètent bien ces différentes remarques :

- on obtient des temps de séjour très grands pour les éléments injectés hors du domaine considéré (au-dessus de 60 km) ; en ce cas, en effet, on est plus dans le cadre d'une source discontinue située dans le volume, mais d'une arrivée continue d'élément par la limite supérieure. Le problème ne peut plus être traité -en ce qui concerne le temps de séjour stratosphérique- comme la décroissance d'un réservoir et on détermine en fait le temps de séjour du domaine situé au-dessus. Dans le cas du ^{238}Pu par contre, introduit dans la haute stratosphère, la stabilisation est assez longue mais on constate que le temps de séjour diminue au fur et à mesure. Il est ainsi de l'ordre de 4 ans les trois années suivant l'injection, et de 20 mois les trois années suivantes ;
- on obtient des temps de séjour variables selon la granulométrie des particules (14 mois avec le ^{90}Sr ; 26 mois avec le ^{14}C) ;
- enfin les déterminations de τ sont comprises entre quelques mois et quelques années selon le temps écoulé depuis l'injection, l'époque considérée et la nature des mesures (bilans stratosphériques ; dépôts au sol).

Cette étude montre bien comme la notion de temps de séjour est délicate à considérer, et surtout à généraliser, lorsque l'on est pas dans le cadre des hypothèses simplificatrices. Les mesures montrent cependant que, lorsque l'on approche ces conditions, on obtient une valeur du temps de séjour moyen dans l'ensemble de la stratosphère de l'ordre de 20 mois.

II.2 - Temps de séjour dans la troposphère

A. DESCENDANTS DU RADON

Lorsque l'on considère la troposphère comme un volume fermé, stratifié et uniforme en régime stationnaire, il est possible de relier le temps de séjour aux rapports d'activité des descendants à longue période du radon :

$$\frac{^{210}Bi}{^{210}Pb} = \frac{\lambda_{Bi}}{(\lambda_{Bi} + 1/\tau)}$$

$$\frac{^{210}Po}{^{210}Pb} = \frac{\lambda_{Bi} \cdot \lambda_{Po}}{(\lambda_{Bi}+1/\tau)(\lambda_{Po}+1/\tau)}$$

A.1 - On trouve dans la littérature des déterminations directes au moyen de ces formules (cf. tableau VI.2), dans l'air près du sol et dans les précipitations (LEHMANN & SITTKUS, 1959 ; FRY & MENON, 1962 ; PEIRSON et al., 1966; BHANDARI et al., 1970).

A.2 - Les autres auteurs ont cependant introduit des corrections diverses (cf. tableau VI.2).

- Certains ont estimé qu'une fraction du ^{210}Po était d'origine stratosphérique (BURTON & STEWART, 1960 ; LAMBERT & NEZAMI, 1965 ; NEZAMI, 1966) et ils ont corrigé les valeurs obtenues dans les précipitations. LAMBERT en particulier a proposé une formule tenant compte de la croissance des activités dans la fraction troposphérique (f_t) :

$$\frac{^{210}Po}{^{210}Pb} = \frac{(\lambda_{Bi} \cdot \lambda_{Po})(1-(\frac{f_t}{e}))(1-\lambda_{Po} \cdot \tau)}{(\lambda_{Bi}+\frac{1}{\tau})(\lambda_{Po}+\frac{1}{\tau})}$$

- D'autres ont, comme nous l'avons vu, envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans la troposphère et corrigé leurs résultats pour obtenir le même temps de séjour (MARTELL & POET, 1969 ; MARTELL, 1970 ; MARTELL & POET, 1970 ; VILENSKIY, 1970 ; POET et al., 1972).
- Certains auteurs, par contre, ont trouvé

Auteur	Année	Rapport utilisé	Mesure	τ	τ corrigé	Déterminations (nombre)	Corrections
LEHMANN	1959	Po/Pb	Air au sol	14 j			
		Po/Pb	Pluies	33 j			
FRY	1962	Bi/Pb	Pluies	6 j			Détermination directe
PEIRSON	1966	Po/Pb	Air au sol	40 j		4 années	
BHANDARI	1970	Bi/Pb	Pluies	30 j		33	
BURTON	1960	Po/Pb	Pluies	29 j	22 j		Fraction d'origine
LAMBERT	1965	Po/Pb	Pluies	33 j	33-42 j		stratosphérique
MARTELL	1970	Bi/Pb	Air en al-	7-15 j	6 j	17	
		Po/Pb	titude	20-60 j			
VILENSKIY	1970	Bi/Pb	Pluies	6 j	4 j		Sources complémentai-
		Po/Pb	----	39 j			res de Po
POET	1972	Bi/Pb	Air au sol	5 j	4 j	20	
		Po/Pb	---------	24 j			
		Bi/Pb	Pluies	8 j	7 j	7	
		Po/Pb	-----	13 j			
NEVISSI	1973	Bi/Pb	Pluies	29 j	35 j	44	Mélange de masses d'air
		Po/Pb	-----	40 j			

TABLEAU VI-2 : *Principales déterminations expérimentales du temps de séjour troposphérique τ, à partir des rapports d'activité entre les descendants à longue période du radon.*

des temps de séjour concordant dans la majorité des cas et attribué les valeurs différentes de τ, obtenues parfois, au mélange de masses d'air de caractéristiques distinctes ; ils ont pour cette raison apporté des corrections tenant compte de la valeur inférieure du temps de séjour dans les basses couches (NEVISSI et al., 1973).

A.3 - On peut aussi citer (cf. tableau VI.3) certaines déterminations du temps de séjour à partir des bilans troposphériques de ^{210}Pb et ^{222}Rn ou du rapport RaC/^{210}Pb. Les valeurs sont en général assez faibles et les résultats dispersés.

Les temps de séjour non corrigés sont finalement de l'ordre de 35 jours avec le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ et variables de 6 à 30 j avec le rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$.

B. ELEMENTS COSMOGENIQUES

Comme je l'ai déjà signalé, les ^{7}Be et ^{32}P ont également été utilisés pour estimer les temps de séjour dans la troposphère (cf.tableau VI.4).

LAL et al. (1960) ont utilisé une méthode de statistique analogue à celle de BOLIN (cf. § I.2.B-2). Ils ont pour cela calculé les temps théoriques d'irradiation des masses d'air : t, à partir du rapport d'activité $^{7}Be/^{32}P$ dans les pluies, en appliquant l'équation de croissance des activités : $A\ (A = Q(1-e^{-\lambda t}))$ et en négligeant les phénomènes d'échanges :

$$\frac{^{7}Be}{^{32}P} = \frac{(\frac{Q_1}{Q_2})(1-e^{-\lambda_1 t})}{(1-e^{-\lambda_2 t})}$$

(avec l'indice (1) pour le ^{7}Be et (2) pour le ^{32}P).

Auteur	Année	Méthode	τ
BLIFFORD	1952		
HAXEL	1955	RaC/^{210}Pb	1 - 10 j
LEHMANN	1959		
STYRA	1960	bilan ^{210}Pb et ^{222}Rn	15 j
PATTERSON	1964	$^{210}Pb/^{222}Rn$	1 - 7 j

TABLEAU VI.3 - *Déterminations expérimentales du temps de séjour troposphérique τ, à partir des bilans de ^{210}Pb et ^{222}Rn et du rapport RaC/^{210}Pb.*

Sur les diagrammes représentant la distribution intégrée de la fréquence des périodes d'irradiation, ils ont déterminé d'après la pente de la courbe un temps de séjour moyen de 45 j.

MURAYAMA (1964) et plus récemment BHANDARI et al. (1970) ont calculé, par des équations analogues à celles établies pour les descendants à longue période du radon, des temps de séjour troposphériques compris entre 40 et 120 jours (moyenne 70 j), à partir du rapport $^{7}Be/^{32}P$ dans l'air ou dans les pluies.

C. AUTRES DETERMINATIONS

Certains auteurs enfin ont essayé d'estimer les temps de séjour troposphériques par des méthodes diverses (cf. tableau VI.5).

C.1 - STEWART et al. (1955) ont ainsi déterminé une valeur de 30 j au moyen des bilans de produits de fission dans la troposphère.

C.2 - JUNGE (1963-b) a obtenu par des considérations théoriques (hauteurs de pluies ; densité de nuages ; taille des particules) des valeurs comprises entre quelques jours dans les basses couches et quelques dizaines de jours en altitude.

C.3 - JACOBI & ANDRE (1963) ont utilisé des modèles tenant compte des phénomènes d'échange et du dépôt sec, sans cependant faire intervenir apparemment la variation avec l'altitude de la masse spécifique de l'air ρ. Ils ont étudié les répartitions verticales des ^{210}Po et ^{210}Pb, en fonction du coefficient de lessivage Λ_1 (étendu à toute la troposphère), pour différents profils verticaux de diffusion. En comparant les courbes théoriques avec le profil expérimental de ^{210}Pb obtenu par BURTON, ils ont déduit que le temps de lessivage $\tau_1 = 1/\Lambda_1$ variait avec l'altitude entre 30 et 70 jours.

Auteur	Année	Méthode	τ
LAL	1960	Statistique Be/P dans les pluies	45 j
MURAYAMA	1964	Be/P dans l'air	44 j
BHANDARI	1970	Be/P dans les pluies	40-120j

TABLEAU VI.4 - *Déterminations expérimentales du temps de séjour troposphérique τ, à partir du rapport $^{7}Be/^{32}P$.*

C.4 - MACHTA enfin (MACHTA et al.,1970), au moyen de modèles de simulation numérique reposant aussi sur l'équation de diffusion (K_z = 4 ou 12 m^2/s) et comportant un profil de lessivage décroissant avec l'altitude, a déterminé la décroissance du contenu troposphérique de produits injectés de manière discontinue à différentes altitudes. Les temps de séjour ainsi déterminés varient en fonction du temps et de l'altitude d'injection. On a ainsi pour des éléments introduits entre 1 et 10 km d'altitude :

- τ compris entre 5 et 100 jours, peu de temps après l'injection ;
- τ compris entre 20 et 80 jours, deux mois après l'injection.

D. DISCUSSION

D.1 - Les temps de séjour obtenus vont de quelques jours à quelques mois, selon les méthodes utilisées, l'origine des mesures et les corrections introduites dans les calculs. La troposphère se présentant comme un domaine non homogène avec des pertes localisées, il est normal de constater une variation dans les temps de séjour pour des éléments de sources différentes.

Auteur	Année	Méthode	τ	Remarques
STEWART	1955	Produits de fission	30 j	
JACOBI	1963	Modèles - comparaison profils Pb-210	τ_1 : 30 à 70 j	
JUNGE	1963	Considérations théoriques (nuages)	qq jours à qq dizaines de jours	(sol et h^{te} trop)
MACHTA	1970	Modèles (décroissance contenu troposphérique)	{ 5 à 100 j { 20 à 80 j	(injection entre sol et h.te trop)

TABLEAU VI.5 : *Déterminations expérimentales diverses du temps de séjour troposphérique τ.*

D.2 - On voit ainsi que, dans le cas des descendants à longue période du radon, il n'est pas possible de prouver l'existence de sources complémentaires de ^{210}Po par le seul fait que les temps de séjour obtenus à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$ sont différents. Nous avons vu que le ^{210}Po, présent dans la troposphère, ne provenait que du ^{210}Pb contenus dans l'air ; les diverses corrections envisagées ne semblent pas justifiées.

On observe un certain désaccord, pour les temps de séjour estimés à partir du rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$ dans les pluies, entre les valeurs faibles obtenues par FRY, VILENSKIY et POET (6 à 8 j) et celles bien plus élevées de BHANDARI et NEVISSI (30 j). Il semble, comme nous le verrons dans l'étude sur modèles, que la position des points de mesure intervienne ; il faut noter cependant que les mesures de BHANDARI et de NEVISSI, plus nombreuses et mieux réparties, doivent être les plus représentatives.

D'autre part, en ce qui concerne les éléments cosmogéniques, nous avons vu qu'il y avait lieu de reconsidérer la valeur du rapport des taux de production. On obtient alors, à partir des mesures de LAL et de BHANDARI, des temps de séjour nettement plus élevés, de l'ordre de 130 et 170 j.

On constate finalement que les déterminations expérimentales de τ croissent, lorsque l'on considère respectivement les rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$, $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{7}Be/^{32}P$, conformément à la position moyenne des sources de ^{210}Bi, ^{210}Po et ^{7}Be (ou ^{32}P).

Les résultats obtenus avec les modèles de diffusion sont intéressants, car ils mettent en évidence la variation des temps de séjour avec l'altitude de production ou les couches considérées, mais ils restent d'applications limitées étant donné les particularités des modèles utilisés (lessivage uniforme ; régime transitoire...).

D.3 - On peut cependant se poser la question de la représentativité des divers résultats. Comme nous l'avons vu, la notion de temps de séjour n'a de signification réelle qu'en régime stationnaire et pour un domaine stratifié. Or :

- la plus grande partie des déterminations est tirée directement de mesures localisées dans l'air au sol ou dans les pluies. Ces valeurs ne sauraient être représentatives de toute la troposphère. Si l'on veut les attribuer à la couche de mesure, il faut alors utiliser des équations convenables tenant compte des flux ;

- la condition de stratification n'est pas respectée dans le cas des descendants du radon au-dessus des continents, étant donné la discontinuité de dégagement de ce dernier. La plupart des mesures sont cependant réalisées uniquement au-dessus des continents ;

- les éléments à période trop courte (radon et premiers descendants, ^{32}P...) donnent une vision fausse des phénomènes, vis-à-vis d'éléments stables de sources similaires ;

- enfin, l'hypothèse du régime stationnaire signifie que l'on fasse la moyenne d'un nombre important de mesures réparties dans le temps et dans l'espace. Cette condition est loin d'être remplie étant donné le petit nombre d'expériences isolées.

Que peut-on finalement penser des valeurs obtenues ? La théorie prévoit que les temps de séjour doivent être distincts, mais les différences enregistrées correspondent-elles bien aux écarts réels ou proviennent-elles des méthodes utilisées et du fait que les conditions idéales ne sont généralement pas remplies ?

J'ai donc étudié le problème des temps de séjour dans la troposphère, par des expériences de simulation numérique sur modèles, en faisant intervenir les différents paramètres et en considérant les éléments les plus couramment étudiés.

III. ETUDE NUMERIQUE DES TEMPS DE SEJOUR DANS LA TROPOSPHERE

J'ai utilisé des modèles reposant sur l'équation *(1)* décrite précédemment. J'ai à ce sujet déjà précisé qu'il s'agissait d'une façon simplifiée d'aborder un problème complexe ; les temps de séjour ainsi déterminés doivent être considérés à l'échelle de la circulation générale.

III.1 - Modèles numériques

A. PRINCIPE

Les solutions analytiques de l'équation *(1)* n'existant que dans les cas simples, j'ai utilisé une résolution numérique selon un schéma de calcul implicite mis au point par ADROGUER (1970) et BIROT (1971). Le principe consiste à remplacer l'équation classique aux dérivées partielles par une équation aux différences finies. On limite, selon les cas, le système à une dimension (altitude z en régime stationnaire) ou à deux dimensions (altitude z et temps t en régime dépendant du temps). L'atmosphère est divisée en couches horizontales où sont connues les valeurs

du coefficient d'échange et de la densité de l'air. On détermine à la limite de chaque couche une valeur approchée de la quantité échangée verticalement, à partir des teneurs dans les couches voisines.

Lorsque l'on veut représenter l'évolution en fonction du temps, on définit un réseau de plans verticaux de pas Δt et on résout le système de proche en proche, en prenant comme condition initiale dans chaque plan la solution calculée dans le plan précédent.

J'ai appliqué ces modèles aux trois groupes d'éléments suivants, en les considérant fixés sur des aérosols de diamètre moyen ($\varepsilon = 1$) :

- descendants à longue période du radon (^{210}Pb ^{210}Bi, ^{210}Po)
- éléments cosmogéniques (^{7}Be, ^{32}P)
- éléments stables (injectés à une altitude variable).

A.1 - Régime stationnaire

On a l'équation différentielle *(3)* :

$$\frac{1}{\rho(z)}\frac{\partial}{\partial z}\left(\rho(z)K(z)\frac{\partial Xi(z)}{\partial z}\right) = (\lambda i + \Lambda_1(z))Xi(z) - Qi(z)$$

avec :

$\Lambda_1(z)$: coefficient de lessivage, fonction de l'altitude (nul pour le radon)

$Qi(z)$: taux de production
- . fonction de l'altitude (éléments cosmogéniques et stables)
- . 0 (radon)
- . $\lambda_{i-1} X_{i-1}(z)$ (descendants du radon)

les conditions aux limites exprimant le flux au sol ϕ_s par :

- le dégagement au sol dans le cas du radon : $\phi_s = -E$, avec E : taux de dégagement du radon ;
- et le dépôt sec au sol des éléments solides:

$$\phi_s = \beta(\rho(z).Xi(z))_{z=h}$$

avec β : vitesse de dépôt des aérosols, définie au voisinage du sol pour le niveau d'altitude h, pris en général égal à 1 mètre.

A.2 - Régime dépendant du temps

On a l'équation générale *(2)* :

$$\frac{\partial Xi}{\partial t}(z,t) = \frac{1}{\rho(z)}\frac{\partial}{\partial z}\left(\rho(z)K_z(z)\frac{\partial Xi}{\partial z}(z,t)\right)$$

$$-(\lambda i + \Lambda_1(z,t))Xi(z,t) + Qi(z,t)$$

Les autres conditions gardant la même forme que précédemment, avec : $X_i(z,t)$, $Q_i(z,t)$, $\Lambda_1(z,t)$ et $E(t)$ dépendant du temps.

B. DESCRIPTION DES MODELES

B.1 - Conditions opératoires

Atmosphère : J'ai envisagé un schéma simplifié d'atmosphère (figure VI.1), limité à 40 km d'altitude avec une tropopause fixe à 11 km, et uti-

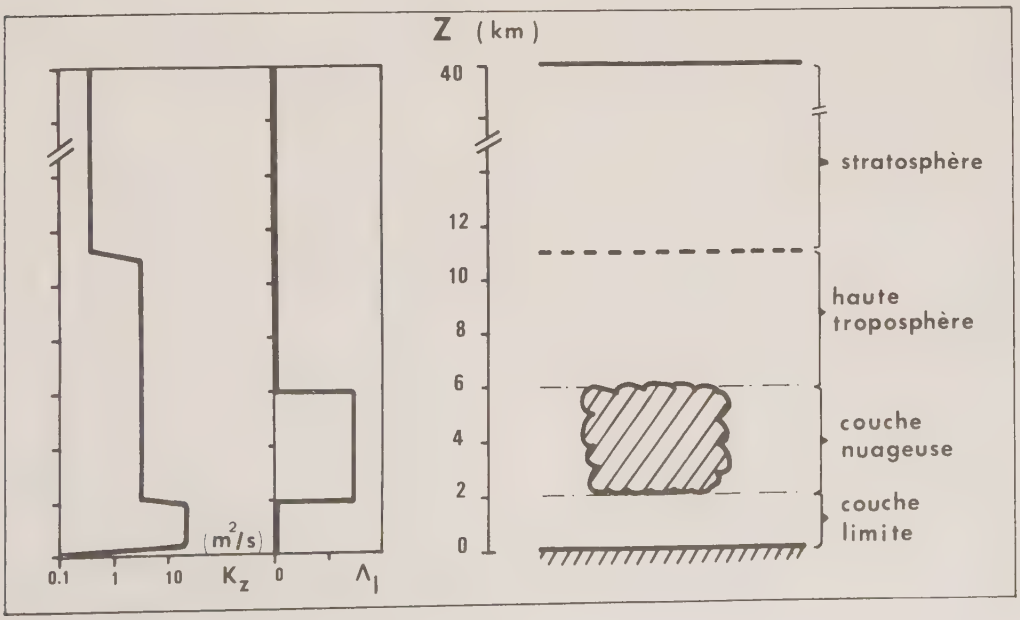

FIGURE VI.1 - *Schéma simplifié d'atmosphère utilisé dans les modèles de simulation.*

lisé la variation verticale de la masse spécifique de l'air correspondant à l'atmosphère standart internationale (LEPAS & ROCHE, 1965). J'ai d'autre part considéré comme étage de lessivage la couche nuageuse moyenne comprise entre 2 et 6 km d'altitude (BRICARD, 1959 ; SEITZ et al., 1968).

Coefficient d'échange : Les coefficients d'échange moyens K_z, considérés dans la littérature (DAVIDSON et al., 1966 ; MACHTA, 1966, SEITZ et al., 1968 ; MACHTA et al., 1970 ; KAROL, 1966, 1970 ; FEELY & SEITZ, 1970), sont de l'ordre de :

- 3 à 6 m^2/s dans la troposphère ;
- 0.1 à 0.4 m^2/s dans la stratosphère.

J'ai utilisé dans les modèles un profil (figure VI.2) tenant compte de la couche limite planétaire (0-2 km) et des transitions au voisinage du sol et de la tropopause (JACOBI & ANDRE, 1963; MACHTA, 1966 ; KAROL, 1970 ; BIROT, 1971). En l'absence d'informations plus précises, je le considèrerai à titre indicatif pour la schématisation des mouvements verticaux.

J'ai aussi, dans les expériences numériques, utilisé des valeurs différentes de K_z dans la troposphère (de 1 à 20 m^2/s) de façon à étudier l'influence de l'amplitude de ces mouvements Je n'ai pas toujours indiqué les résultats, qui vont toujours dans le même sens, afin de ne pas alourdir la présentation de ce travail.

Sources : La source de radon, localisée au sol, est selon les modèles : uniforme ou hétérogène (nulle sur les océans et égale à une constante sur les continents). J'ai utilisé, dans le cas des éléments cosmogéniques, la répartition verticale des taux de production pour le 45° parallèle (latitude moyenne) (LAL et al., 1958), la valeur absolue du rapport des taux de production étant ici indifférente. J'ai enfin simulé l'injection d'un élément stable à une altitude variable Z_i, en prenant : $Q_i(z) = 1$ at/s pour $z = Z_i$ et $Q_i(z) = 0$ ailleurs.

Conditions aux limites : On traduit donc la capture des éléments solides, par le sol ou la végétation, au moyen de la vitesse de dépôt : β = 0.2 cm/s à 1 mètre du sol (PEIRSON & KEANE,1962; PEIRSON & CAMBRAY, 1965 ; DAVIDSON et al., 1966; CHAMBERLAIN & CHADWICK, 1966 ; SEITZ et al., 1968 ; KAROL, 1970 ; FEELY & SEITZ, 1970).

J'ai d'autre part choisi une valeur nulle (KAROL, 1970) pour les concentrations à l'infini, cette dernière condition s'appliquant dans les modèles à la dernière couche (40 km), donc assez loin de la tropopause pour ne pas introduire de perturbation notable. J'ai également envisagé la condition de réflexion à la limite supérieure ; mais les flux y étant très faibles, les résultats ne diffèrent pratiquement pas de ceux obtenus en annulant les concentrations.

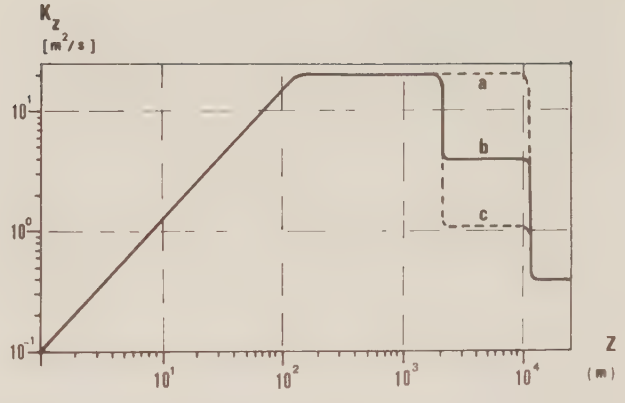

FIGURE VI.2 - *Variation du coefficient d'échange vertical K_z avec l'altitude z (a/et c/ profils extrêmes considérés ; b/ profil moyen).*

Enfin, en régime dépendant du temps, j'ai toujours considéré une atmosphère initialement vide d'éléments.

B.2 - Modèles expérimentaux

J'ai utilisé dans cette étude trois types de modèles.

MODELE (1) : Il permet, en régime stationnaire et avec une source plane ou stratifiée (production uniquement fonction de l'altitude z), d'étudier l'influence des mouvements verticaux, du dépôt sec, de l'étage de lessivage et de l'altitude d'injection.

MODELE (2) : Ce modèle a pour but d'étudier, dans le cas du radon et de ses descendants, l'influence d'une discontinuité de dégagement. J'ai pour cela considéré un schéma simplifié de circulation (déplacement zonal des masses d'air autour du globe) et adapté le "régime dépendant du temps", en considérant un profil de vent constant avec l'altitude (5 m/s) et en faisant varier avec le temps le taux de dégagement du radon (nul sur les océans et de 0.63 at/cm^2. s sur les continents) de façon à simuler le passage successif, le long du 45° parallèle, sur :

- 5000 km de mer (Océan Atlantique)
- 8000 km de terre (Europe - Asie)
- 9000 km de mer (Océan Pacifique)
- 5000 km de terre (Amérique)

Après un nombre suffisant de cycles, correspondant chacun à une rotation autour du globe, on obtient un régime d'équilibre et on étudie alors les variations des temps de séjour apparents, par rapport à la discontinuité "Océan-Atlantique - Europe".

MODELE (3) : Enfin, pour étudier l'influence des discontinuités dues au lessivage, j'ai simulé en "régime dépendant du temps", pour une source plane ou stratifiée, un lessivage complet et discontinu dans l'étage de lessivage : 2-6 km d'altitude. On étudie ainsi, au voisinage de la discontinuité, la variation des temps de séjour apparents en fonction du temps.

III.2 - Etude des temps de séjour troposphériques dans le cadre des hypothèses de stratification, en régime indépendant du temps

Les modèles de simulation permettent de déterminer les répartitions verticales des éléments, ainsi que les flux à chaque niveau et les différentes pertes (dépôts sec et humide). On calcule alors les teneurs, en intégrant les concentrations dans une colonne verticale de la troposphère (ou de la tranche considérée), et on détermine les temps de séjour des éléments à partir des rapports d'activité ou des relations de bilan établies lors de l'étude théorique.

A. TEMPS DE SEJOUR DANS L'ENSEMBLE DE LA TROPOSPHERE

A.1 - Descendants du radon

1/ Lessivage uniforme

Lorsque l'on envisage les conditions souvent considérées dans la littérature (lessivage uniforme dans toute la troposphère ; pas de dépôt sec : $\beta = 0$), on vérifie que, conformément à la théorie, les temps de séjour, calculés à partir des rapports d'activité $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, sont égaux au temps de lessivage τ_l et indépendants des échanges verticaux (figure VI.3, courbe A).

Lorsque l'on considère le dépôt sec au sol ($\beta = 0.2$ cm/s), les temps de séjour calculés à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$ deviennent différents et diminuent (figure VI.3, courbes B) ; les valeurs de τ calculées à partir du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ sont supérieures à celles tirées du rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$. La variation du coefficient d'échange troposphérique (K_z = 1, 3 ou 10 m^2/s) n'a d'influence sensible (β décroissant pour K_z augmentant) que dans le cas des temps de séjour tirés du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ et pour les valeurs élevées du temps de lessivage (τ_l supérieur à 50 jours).

On obtient donc déjà une différenciation notable entre les temps de séjour, lorsque l'on considère le dépôt sec.

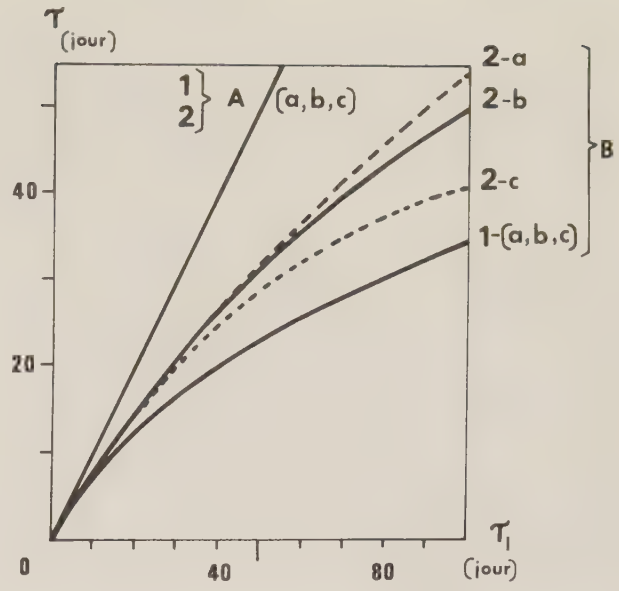

FIGURE VI.3 - *(Régime stationnaire, lessivage étendu à toute la troposphère). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l, des temps de séjour troposphérique τ tirés des rapports d'activité entre les descendants du radon : $^{210}Bi/^{210}Pb$ (1) et $^{210}Po/^{210}Pb$ (2)*

- dans diverses conditions de dépôt sec au sol (A/ $\beta = 0$; B/ $\beta = 0.2$ cm/s);

- pour différents coefficients d'échange troposphériques K_z (a/ 1 m^2/s ; b/ 3 m^2/s ; c/ 10 m^2/s).

2/ Lessivage limité à la couche nuageuse

- Lorsque l'on fait intervenir la localisation des processus de lessivage entre 2 et 6 km, en plus du dépôt sec, on constate que les courbes de variation des temps de séjour sont encore plus distinctes (figure VI.4). C'est ainsi que, pour K_z = 3 m^2/s par exemple, les valeurs de τ calculées à partir du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ sont supérieures d'un facteur 1.7 à celles calculées à partir du rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$.

La localisation des processus de dépôt entraîne donc une différence très nette entre les temps de séjour calculés à partir de chacun des rapports d'activité.

Conformément à la théorie, l'augmentation du coefficient d'échange troposphérique (figure VI.4) réduit l'écart entre les courbes de temps de séjour ; celles-ci coincidant à la limite, lorsque les échanges verticaux sont très importants.

- Lorsque l'on calcule les temps de séjour au moyen des bilans troposphériques des éléments,

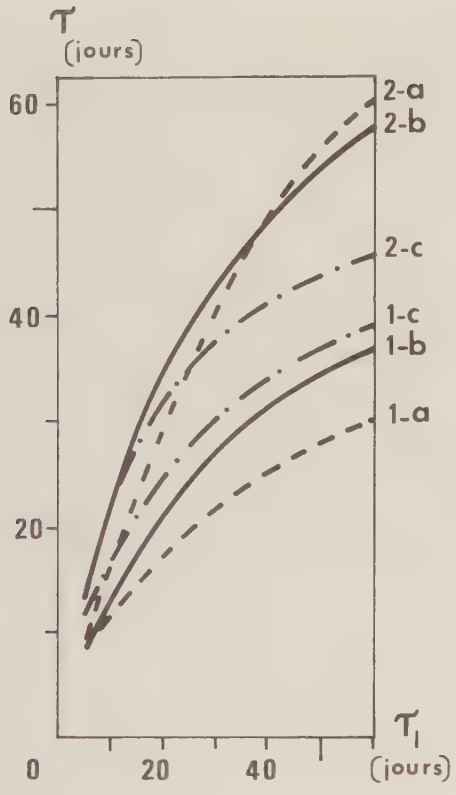

FIGURE VI.4 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude: 2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l, des temps de séjour troposphériques τ tirés des rapports d'activité entre les descendants du radon : $^{210}Bi/^{210}Pb$ (1) et $^{210}Po/^{210}Pb$ (2), pour différents coefficients d'échange troposphériques K_z (a/ 1 m^2/s ; b/ 3 m^2/s ; c/ 10 m^2/s).*

on retrouve des différences analogues (figure VI.5). Pour un temps de lessivage Λ_l de 30 j et un coefficient d'échange de 3 m^2/s, les temps de séjour sont de :

- 23 j avec le ^{210}Pb
- 26 j avec le ^{210}Bi ou le $^{210}Bi/^{210}Pb$
- 44 j avec le $^{210}Po/^{210}Pb$
- 48 j avec le ^{210}Po

A.2 - Eléments cosmogéniques

L'application du modèle précédent (lessivage entre 2 et 6 km ; dépôt au sol : β = 0.2 cm/s ; K_z troposphérique égal à 3 m^2/s) aux ^7Be et ^{32}P permet de calculer les temps de séjour à partir du rapport d'activité $^7Be/^{32}P$ ou des bilans de chaque élément. On constate (figure VI.5) qu'ils sont nettement supérieurs à ceux obtenus avec les descendants du radon et que l'utilisation du rapport $^7Be/^{32}P$ conduit à des valeurs de τ sensiblement plus élevées que celles données par les éléments eux-mêmes. On a ainsi pour Λ_l = 30 j :

τ = 115 j à partir du $^7Be/^{32}P$
88 j avec le ^7Be
100 j avec le ^{32}P

En effet, les arrivées stratosphériques ne sont plus dans ce cas négligeables ($\phi \neq 0$) et les pertes (lessivage, dépôt sec et désintégration) ne sont pas égales à la production troposphérique. Les valeurs de τ, calculées à partir du rapport d'activité des contenus troposphériques $^7Be/^{32}P$, ne correspondent pas à celles des éléments.

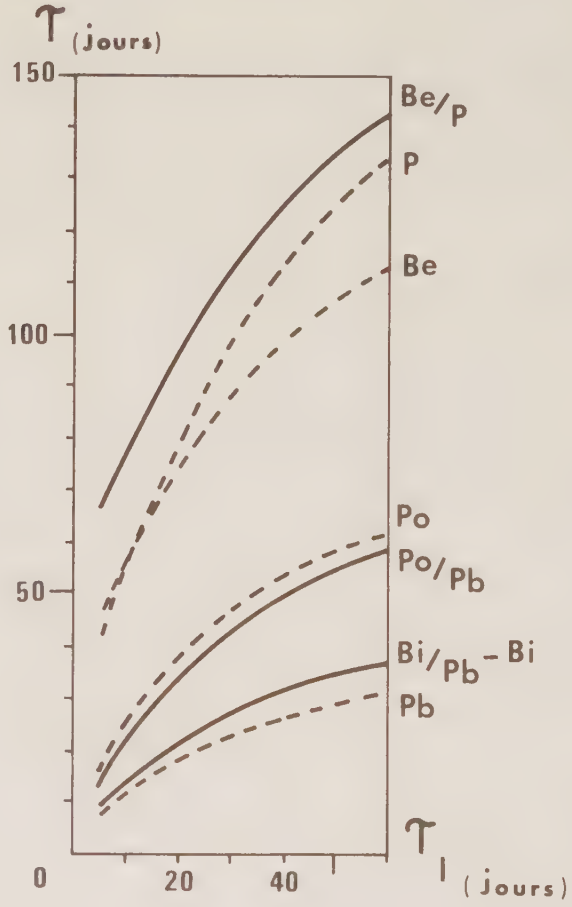

FIGURE VI.5 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique = 3 m^2/s). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l, des temps de séjour troposphériques τ calculés à partir des rapports d'activité et des bilans troposphériques d'éléments, dans le cas des descendants du radon (^{210}Pb, ^{210}Bi, ^{210}Po) et des éléments cosmogéniques (^7Be, ^{32}P).*

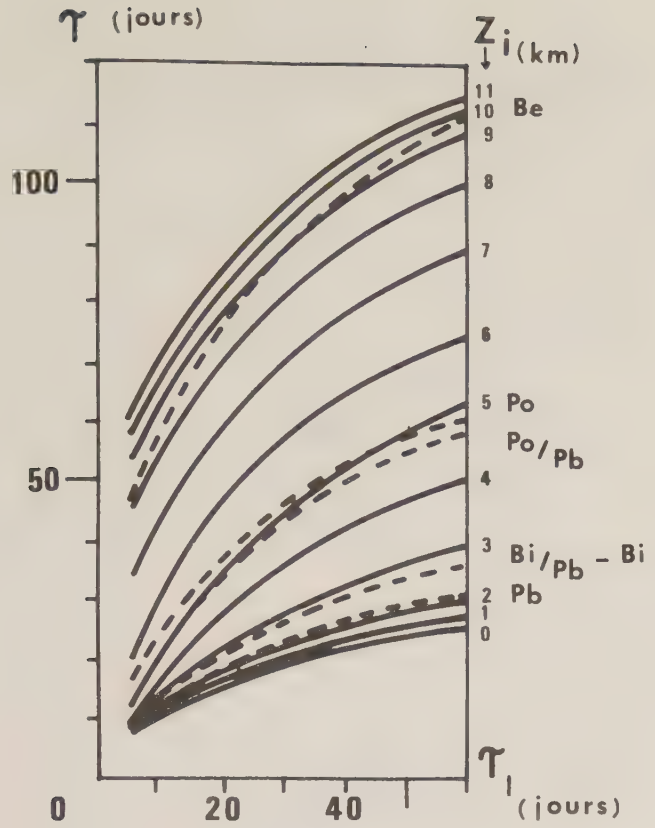

FIGURE VI.6 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude:2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique = 3 m^2/s). Variations comparées, en fonction du temps de lessivage τ_l, des temps de séjour troposphériques τ calculés avec :*

- des éléments stables injectés à diverses altitudes Z_i ;

- les descendants du radon (^{210}Pb, ^{210}Bi, ^{210}Po) et leurs rapports d'activité ;

- les éléments cosmogéniques (^{7}Be, ^{32}P) et leur rapport d'activité.

D'autre part, en raison de la période relativement courte du ^{32}P (14.45 j) et de la variation accusée avec l'altitude des taux de production, la perte par désintégration, lors du transport vers une zone d'élimination, est plus importante pour le ^{32}P que pour le ^{7}Be. Aussi, le temps de séjour mesuré avec le ^{32}P devient-il supérieur à celui obtenu avec le ^{7}Be, dès que le temps de lessivage devient grand devant la période du ^{32}P. On vérifie bien qu'il ne faut utiliser que des éléments dont la période soit plus grande ou du même ordre de grandeur que les temps de séjour mesurés.

A.3 - Eléments stables

L'injection d'un élément stable à une altitude variable Z_i permet d'étudier l'influence de l'altitude de formation, dans les conditions opératoires précédentes. La figure VI.6 présente la variation de τ en fonction du temps de lessivage τ_l, pour différentes altitudes d'injection. On constate que le temps de séjour augmente avec l'altitude Z_i et le temps de lessivage τ_l.

Pour un temps de lessivage τ_l = 30 j, τ varie ainsi (figure VI.7) de 18 j pour un élément injecté près du sol à environ 96 j pour un élément injecté près de la tropopause. On constate aussi que les proportions respectives de pertes par lessivage (courbe 2) et par dépôt sec (courbe 1) dépendent également de Z_i. C'est ainsi que le dépôt sec sera prépondérant pour un élément injecté près du sol (75 % dans l'exemple considéré), alors que ce sera le lessivage (76%) pour un produit injecté au niveau de la tropopause.

Si l'on compare les courbes de variation des temps de séjour, obtenues pour les éléments radioactifs, avec le réseau précédent déterminé pour les éléments stables, on observe pour chaque radionucléide une "altitude apparente" de formation qui correspond approximativement au "centre de gravité" de la courbe des taux de

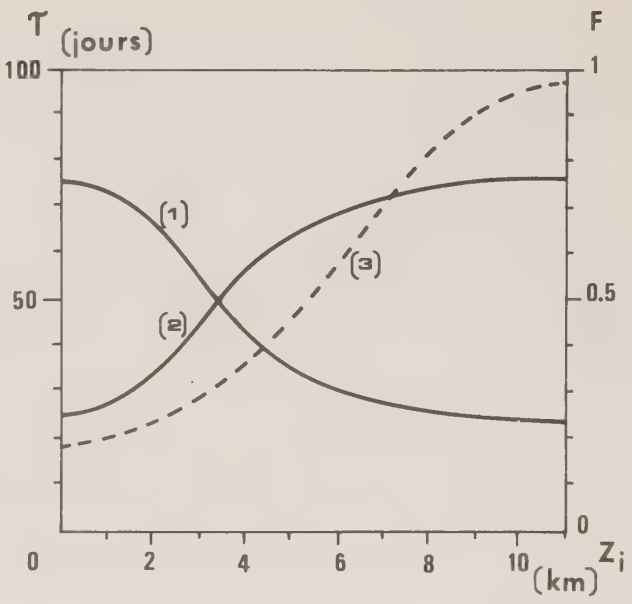

FIGURE VI.7 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique : 3 m^2/s). Simulation d'injection d'un élément stable à une altitude donnée Z_i. Variations, en fonction de l'altitude d'injection Z_i, des fractions F de pertes par dépôts sec (1) et humide (2), et du temps de séjour τ (3), pour un temps de lessivage de 30 jours.*

production, comme on l'a vu lors de l'étude théorique. Cette altitude apparente est d'environ 9000 m pour le ^{7}Be, 5000 m pour le ^{210}Po, 2500m pour le ^{210}Bi et 2000 m pour le ^{210}Pb. Pour les ^{210}Pb et ^{210}Bi (surtout formés dans les basses couches à partir du radon) et pour le ^{7}Be (produit principalement dans la haute troposphère) ces altitudes correspondent bien à la position des sources. Le ^{210}Po, par contre, a une source (^{210}Bi) répartie dans toute la troposphère (centre de gravité situé à l'altitude moyenne de 5000 m) et il est finalement représentatif de l'ensemble de la troposphère.

B. TEMPS DE SEJOUR DANS LES COUCHES TROPOSPHERIQUES

Il est possible de séparer la troposphère en trois couches de caractéristiques distinctes :

- couche limite planétaire (0 - 2 km)
- couche nuageuse (2 - 6 km)
- haute troposphère (6 - 11 km)

et d'y déterminer les temps de séjour, en tenant compte des flux échangés dans le cas du calcul de τ à partir des bilans d'éléments.

B.1 - Elements stables

1/ Dans les conditions opératoires précédentes, on observe que les temps de séjour augmentent en général avec l'altitude moyenne des couches (figures VI.8 et VI.9).

Lorsque l'on considère les variations de τ en fonction du temps de lessivage τ_l, pour différentes altitudes d'injection Z_i (figure VI.9) on constate que les temps de séjour augmentent toujours avec τ_l, et en général avec Z_i sauf dans le cas de la couche nuageuse pour des éléments injectés dans les basses couches (0 - 1km).

2/ Dans une couche donnée, les temps de séjour des éléments produits à l'intérieur sont toujours inférieurs à ceux des éléments produits en dehors (figure VI.8).

- Dans la haute troposphère, où les pertes ne s'opèrent que par la limite inférieure, les temps de séjour ne sont finis que pour des éléments injectés au-dessus de cette limite (6km);
- Dans la couche nuageuse, les éléments produits dans la couche limite ont un temps de séjour égal au temps de lessivage, et ceux produits dans la haute troposphère un temps de séjour indépendant de Z_i ;
- Enfin, dans la couche limite, les temps de séjour des éléments produits dans les couches supérieures sont aussi indépendants de Z_i. En effet, pour ces éléments, les seules pertes intervenant dans la couche limite sont celles par dépôt sec au sol (flux conservatifs). On peut écrire :

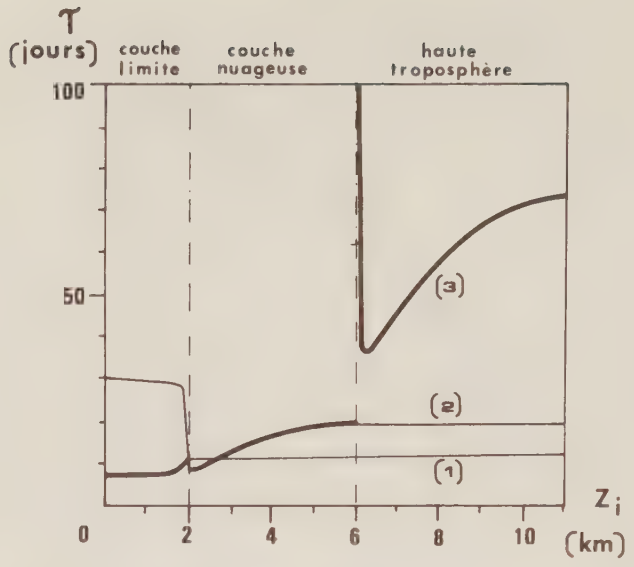

FIGURE VI.8 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique : 3 m^2/s). Simulation d'injection d'un élément stable à une altitude donnée Z_i. Variations, en fonction de l'altitude d'injection Z_i, des temps de séjour dans les couches (1/ couche limite ; 2/ couche nuageuse ; 3/ haute troposphère) pour un temps de lessivage de 30 jours.*

$$\overline{X} = H \cdot \alpha \cdot X_o$$

avec :

X : teneur de la couche
H : hauteur de la couche
X_o : concentration volumique à 1 m
α : coefficient de proportionalité, fonction du profil de répartition des concentrations dans la couche.

On a pour les pertes :

$$\overline{P} = \beta \cdot X_o$$

D'où : $\tau = \frac{\overline{X}}{\overline{P}} = \alpha . \frac{H}{\beta}$

et en exprimant H en km et β en cm/s :

$$\tau = 1.15\ \alpha \frac{H}{\beta} \quad \text{(jours)}$$

Le temps de séjour est directement proportionnel à la hauteur H de la couche limite et inversement proportionnel à β.

α est constant pour les éléments produits au-dessus de la couche, et celle-ci étant

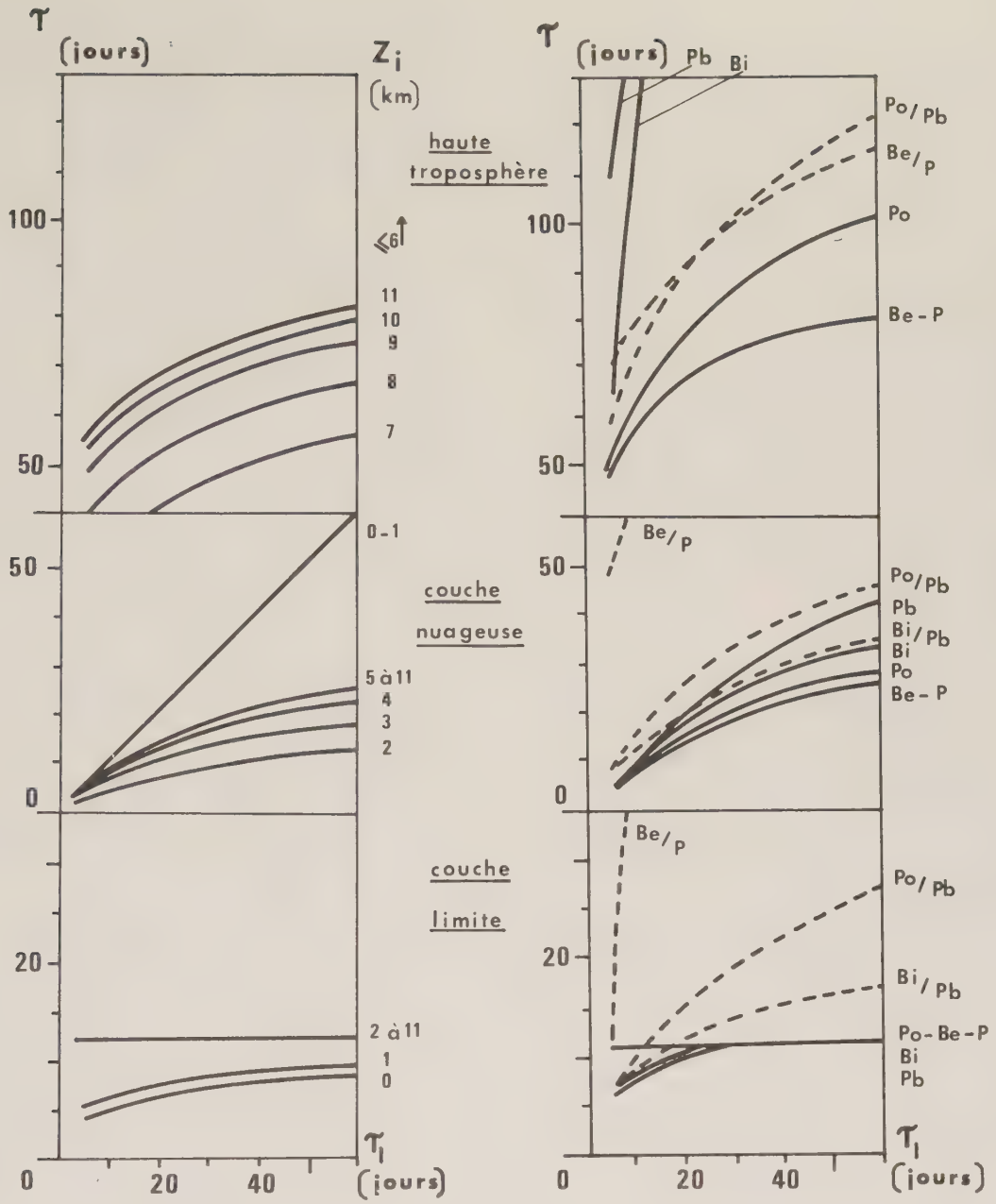

FIGURE VI.9 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km ; dépôt sec : β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique : 3 m^2/s) Variations des temps de séjour dans les couches troposphériques en fonction du temps de lessivage τ_l, dans le cas des éléments stables et des éléments radioactifs.*

relativement bien mélangée : $\alpha \simeq 1$. Le temps de séjour est donc bien fixe, indépendant de Z_i et de K_z troposphérique. Ainsi, pour H = 2 km et β = 0.2 cm/s, on retrouve bien la valeur donnée par les modèles : $\tau \sim 11.5$ j.

Pour les éléments formés dans la couche limite, il faut inclure de plus dans les pertes les fuites, par la limite supérieure, vers la zone de lessivage. On obtient donc des valeurs de τ inférieures. On a ainsi : $\tau \sim 7$ jours pour un élément injecté au niveau du sol et pour τ_l = 30 j.

REMARQUE : Le temps de séjour dans la couche limite dépend de la hauteur de cette couche, c'est-à-dire de la zone de mélange. Si l'épaisseur de celle-ci est plus faible, le temps de séjour le sera également. Il est donc indispensable, lorsque l'on parle de temps de séjour

dans les "basses couches" de connaître et de bien préciser les limites de ce domaine.

B.2 - Eléments radioactifs

1/ Les temps de séjour des divers éléments radioactifs étudiés sont le reflet de ces observations, étant donné la répartition de leurs sources. On observe ainsi que (figure VI.9) :

- dans la couche limite, les temps de séjour sont identiques et égaux à ceux des éléments stables produits au-dessus (11.5 j) ;
- dans la couche nuageuse, τ décroit respectivement pour les ^{210}Pb, ^{210}Bi, ^{210}Po et ^{7}Be - ^{32}P ;
- dans la haute troposphère seuls sont vraiment définis les temps de séjour relatifs aux ^{210}Po, ^{7}Be et ^{32}P.

2/ Lorsque l'on considère les valeurs de τ déduites des rapports d'activité, on constate que :

- dans la couche limite, les valeurs de τ, tirées des rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{210}Bi/^{210}Pb$, sont respectivement triples et doubles de celles d'éléments stables produits au niveau du sol. On a ainsi pour τ_1 = 30 j :

  τ = 7 j pour les éléments stables (émis au sol
  14 j avec le $^{210}Bi/^{210}Pb$
  20 j avec le $^{210}Po/^{210}Pb$

- dans la zone nuageuse, les valeurs de τ, données par le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$, sont ici aussi supérieures à celles données par le rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$, et plus ou moins différentes de celles des éléments eux-mêmes. On a ainsi pour τ_1 = 30 j :

  τ = 25 j avec le $^{210}Bi/^{210}Pb$
  35 j avec le $^{210}Po/^{210}Pb$

- dans la haute troposphère, seuls sont utilisables les rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{7}Be/^{32}P$ mais les temps de séjour correspondants sont très surestimés par rapport à ceux des éléments. On a ainsi pour τ_1 = 30 j :

  τ = 100 j avec les rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{7}Be/^{32}P$
  83 j avec le ^{210}Po
  72 j avec les ^{7}Be et ^{32}P

REMARQUE : Les rapports moyens d'activité $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, mesurés dans l'air au niveau du sol et dans les précipitations, sont représentatifs respectivement de ceux dans les couches limites et nuageuses. Cependant, dans le cas des précipitations, il faut prendre soin de ne considérer que les rapports dans les pluies et non pas -comme on le fait en général- ceux dans le dépôt total (sec et humide) qui conduisent à des valeurs de τ inférieures (respectivement 17 et 25 j pour τ_1 = 30 j).

C. CONCLUSION

Les expériences de simulation effectuées en régime stationnaire avec un système stratifié, montrent que les temps de séjour dans la troposphère varient bien de manière importante selon les éléments considérés (sources) de 20 à 100 j environ, dans des conditions moyennes d'échange et de lessivage, pour des éléments injectés entre le sol et la tropopause.

Les éléments radioactifs utilisés permettent en général de calculer, au moyen des relations de bilan, des temps de séjour correspondant à leur zone de production. On constate que le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ conduit à des valeurs de τ environ doubles de celles données par le rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$. Quant au rapport $^{7}Be/^{32}P$, il donne toujours des valeurs assez surestimées.

Dans l'ensemble de la troposphère, le rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$ conduit à un temps de séjour représentatif des éléments produits dans les basses couches, et le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ à un temps de séjour représentatif des éléments produits dans toute la troposphère.

Lorsque l'on considère les couches de la troposphère, ces deux rapports sont utilisables dans la couche limite (mesures au sol) et dans la couche nuageuse (mesures dans les pluies) mais ils donnent des valeurs de τ supérieures à celles des éléments, surtout dans la couche limite. Dans la haute troposphère, seul reste applicable le rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ avec le rapport $^{7}Be/^{32}P$, et ils donnent des temps de séjour très supérieurs à ceux des éléments.

III.3 - Etude des temps de séjour troposphériques apparents, déterminés au moyen des produits radioactifs, dans le cas où les hypothèses simplificatrices ne sont plus applicables

Nous avons vu que la notion de temps de séjour était surtout intéressante dans le cadre de certaines hypothèses simplificatrices. L'étude numérique précédente montre alors que les temps de séjour, déduits des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, ne diffèrent cependant pas de plus d'un facteur 2. Or des écarts bien plus importants ont parfois été constatés expérimentalement. Cela provient, comme je l'ai déjà souligné lors de l'exposé des travaux antérieurs,

de ce que les hypothèses de stationnarité et de stratification ne sont applicables, dans la troposphère, qu'aux valeurs moyennes. Lorsque l'on calcule des valeurs de temps de séjour, à partir d'un petit nombre de résultats et sans prendre de précautions opératoires, les écarts peuvent alors être considérables.

J'ai ainsi étudié, dans un certain nombre de cas se présentant en pratique les différences entre les valeurs des temps de séjour.

A. SOURCE NON STRATIFIEE EN REGIME INDEPENDANT DU TEMPS

Le radon se dégageant principalement des continents, la source de ^{210}Pb est en fait hétérogène. J'ai étudié, au voisinage des discontinuités, la variation des temps de séjour déterminés à partir des descendants du radon, en considérant pour cela le cas de l'arrivée sur l'Europe d'air océanique (modèle 2), dans les conditions opératoires précédentes. Au bout d'un nombre suffisant de rotations autour du globe, le régime devient stationnaire en chaque point et l'on détermine, à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, les temps de séjour apparents τ_a au-dessus du continent, en fonction de la distance à la mer X_d (figure VI.10).

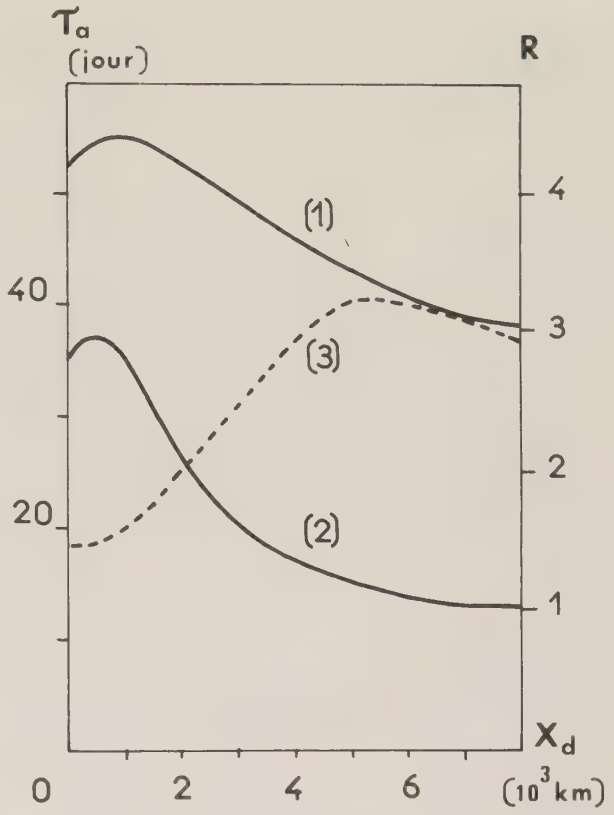

FIGURE VI.10 - *(Régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique : 3 m^2/s). Discontinuité de dégagement du radon. Variations en fonction de la distance X_d à la discontinuité "Océan Atlantique-Europe" et pour un temps de lessivage τ_l de 30 jours :*

- du temps de séjour troposphérique apparent τ_a au-dessus du continent (calculé à partir des rapports d'activité $^{210}Po/^{210}Pb$ (1) et $^{210}Bi/^{210}Pb$ (2)) ;

- du rapport (3) entre les valeurs des temps de séjour τ_a (1)/τ_a (2).

A.1 - On constate que les temps de séjour τ_a diminuent et se distinguent de manière appréciable en fonction de l'éloignement X_d. On passe ainsi, pour τ_l = 30 j, de valeurs de 36 et 52 jours, respectivement à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$ au niveau de la côte à des valeurs de 15 et 45 jours à 4000 km sur le continent. L'apport de ^{210}Pb et ^{210}Bi, récemment formés dans les basses couches, modifie en effet très sensiblement les rapports moyens d'activité et leur utilisation directe conduit à des différences encore plus importantes dans les valeurs des temps de séjour.

A.2 - L'effet est encore plus prononcé dans les basses couches. Beaucoup de déterminations de temps de séjour sont ainsi réalisées sur les continents, à partir des mesures des rapports dans l'air au niveau du sol où les différences sont très importantes, comme l'illustre bien l'exemple suivant :

Si l'on considère une masse d'air d'origine océanique correspondant, pour les descendants à longue période du radon, à un temps de séjour de l'ordre de 40 j $^{210}Bi/^{210}Pb$ = 0.84 ; $^{210}Po/^{210}Pb$ = 0.12) -cas fictif puisque les valeurs de τ sont en fait différentes comme nous l'avons vu-, lors du passage au-dessus d'un continent les basses couches se chargent en radon, qui donne du ^{210}Pb. Les observations expérimentales et les calculs théoriques montrent que la concentration du ^{210}Pb peut facilement doubler en 1 ou 2 jours de contact (ce qui correspond à une distance sur le continent de l'ordre de 1000 à 2000 km). Les nouveaux rapports ($^{210}Bi/^{210}Pb$ = 0.42 ; $^{210}Po/^{210}Pb$ = 0.06) donnent alors respectivement des valeurs de temps de séjour de l'ordre de 5 et 20 jours, c'est-à-dire des chiffres très comparables à ceux trouvés par POET à Boulder (Colorado). Et les différences sont encore plus accusées si l'on part de temps de séjour différents dans la

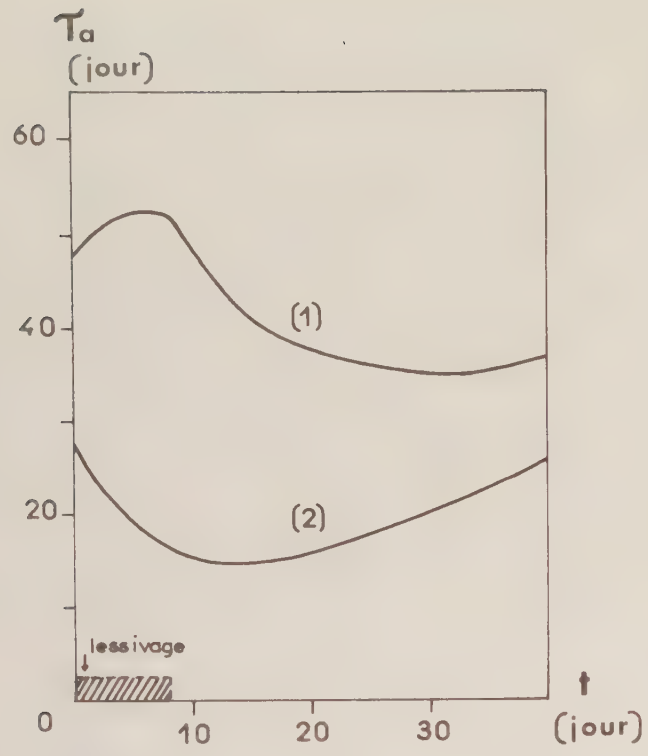

FIGURE VI.11 - *(Régime dépendant du temps, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol : = 0.2 cm/s, K_z troposphérique 3 m^2/s). Influence d'une discontinuité de lessivage (durée : 8 jours) sur la détermination, en fonction du temps, des temps de séjour apparents τ_a, tirés des rapports d'activité : $^{210}Po/^{210}Pb$ (1) et $^{210}Bi/^{210}Pb$ (2).*

masse d'air océanique, comme c'est en fait le cas.

En résumé, on voit que l'on peut obtenir des valeurs très différentes pour les temps de séjour apparents τ_a, déduits des rapports d'activité des descendants du radon, non seulement si l'on considère les mesures au niveau du sol, mais aussi les contenus troposphériques intégrés. Les mesures réalisées à l'intérieur des continents ont ainsi tendance à donner des valeurs de τ inférieures (POET et al., 1972 ; VILENSKIY, 1970) à celles obtenues au-dessus des océans ou dans les stations cotières (LAMBERT & NEZAMI, 1965 ; PEIRSON et al., 1966; BHANDARI et al., 1970 ; NEVISSI et al., 1973).

B. REGIME DEPENDANT DU TEMPS

B.1 - Lessivage discontinu

Les perturbations atmosphériques sont en fait limitées dans le temps, et le coefficient de lessivage Λ_1 est à la fois fonction de z et de t. J'ai simulé, en régime dépendant du temps (modèle 3), une discontinuité de lessivage, en considérant successivement dans la couche de 2 à 6 km un coefficient Λ_1 :

- $\Lambda_1 = (1/30)\ j^{-1}$, durant un temps assez long pour atteindre le régime stationnaire ;
- $\Lambda_1 = 1\ s^{-1}$, pendant unè durée de 8 jours (durée moyenne d'existence des perturbations) (QUENEY, 1959) ;
- $\Lambda_1 = 0$ le reste du temps.

Un tel modèle est évidemment très schématique. Il a pour but de mettre en évidence l'influence d'une discontinuité dans le lessivage sur la détermination des temps de séjour apparents, calculés à partir de résultats isolés dans le temps et dans l'espace.

Lorsque l'on étudie la variation dans le temps des temps de séjour apparents, calculés à partir des rapports d'activité des contenus troposphériques ($^{210}Bi/^{210}Pb$, $^{210}Po/^{210}Pb$), on constate qu'ils évoluent différemment au voisinage de la discontinuité (figure VI.11), la dé-

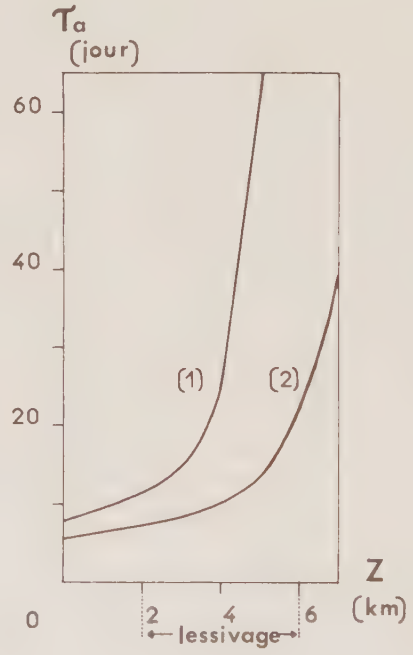

FIGURE VI.12 - *(Régime dépendant du temps, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol β = 0.2 cm/s, K_z troposphérique : 3 m^2/s). Discontinuité de lessivage (durée : 8 jours). Variations avec l'altitude z des temps de séjour apparents τ_a calculés à partir des rapports entre les activités en altitude des descendants du radon : $^{210}Po/^{210}Pb$ (1) et $^{210}Bi/^{210}Pb$ (2), 4 jours après la fin du lessivage.*

croissance étant la plus accusée pour les valeurs de τ_a tirées du rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$. On obtient ainsi, à la fin du lessivage, des temps de séjour apparents de 15 et 52 jours respectivement avec les rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$.

Si l'on considère non plus les contenus troposphériques mais les répartitions verticales des rapports d'activité et que l'on calcule à chaque altitude des temps de séjour apparents, en négligeant les flux, les différences sont encore plus accusées (figure VI.12). Quatre jours après la fin du lessivage, les valeurs de τ_a, obtenues à partir des rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, sont respectivement de 13 et 65 jours à 5 km d'altitude.

De tels résultats peuvent ainsi très bien expliquer les valeurs de τ assez différentes obtenues par MARTELL (cf. tableau VI.2) à partir des mesures en altitude.

B.2 - Production discontinue

Certaines déterminations des temps de séjour troposphériques ont été faites en utilisant les produits de fission . A partir des mesures effectuées dans la troposphère (concentration ; dépôts) et présentées dans les bulletins HASL (TELEGADAS, 1968 ; VOLCHOK & KLEINMAN, 1971), j'ai calculé les contenus et pertes troposphériques relatives au ^{90}Sr et déterminé les temps de séjour à des époques et latitudes diverses.

On constate (figure VI.13-A) que τ varie périodiquement et qu'il est minimum (30-50 jours) en "été-automne" et maximum (70-90) en "hiver-printemps". Ceci vient de ce que l'on a un régime d'injection discontinu, comme le montrent bien (figure VI.13-B) les variations du contenu troposphérique et de la concentration dans l'air au sol. Au moment des injections (hiver-printemps), les contenus troposphériques sont importants et le ^{90}Sr surtout localisé dans la haute troposphère ; les pertes sont

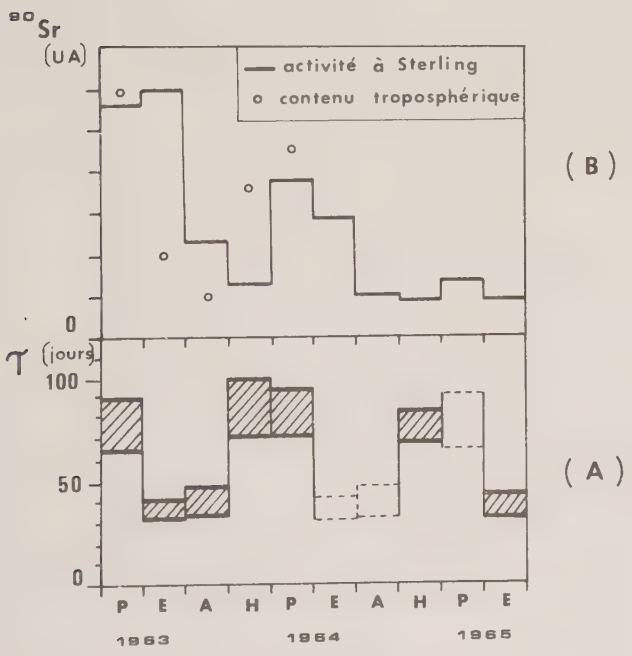

FIGURE VI. 13 - *Variations entre 1963 et 1965, à 40° N :*

- du temps de séjour troposphérique τ déterminé à partir du ^{90}Sr ;

- de l'activité du ^{90}Sr dans l'air au sol (Sterling) et de son contenu troposphérique à 40°N.

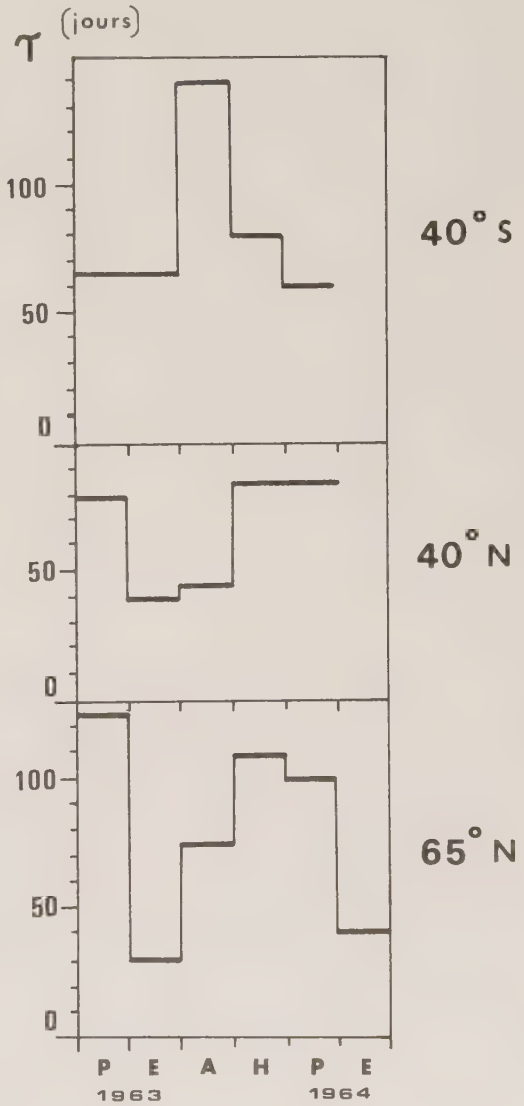

FIGURE VI.14 - *Variations au cours des années 1963 et 1964 des temps de séjour troposphériques déterminés à partir du ^{90}Sr, à différentes latitudes (40°S ; 40°N ; 65°N).*

alors relativement faibles, ce qui donne des temps de séjour élevés. En été-automne par contre, le ^{90}Sr ayant diffusé dans toute la troposphère, les pertes relatives augmentent et on obtient des valeurs de τ plus faibles.

Lorsque l'on considère (figure VI.14) les variations des temps de séjour pour différentes latitudes (65°N;40°N;40°S),on observe que les variations périodiques sont opposées dans les 2 hémisphères et que l'amplitude des variations est plus accusée aux fortes latitudes (30 à 120 j). Ces différences sont liées aux modes d'injection des produits de fission dans la troposphère et à leurs localisations.

On voit que l'on peut obtenir des temps de séjour variant d'un facteur 4 , selon l'époque et l'endroit de la mesure. Il est donc très délicat d'étendre de tels résultats à d'autres éléments en régime indépendant du temps. Tout au plus peut-on considérer les résultats obtenus en été-automne comme des valeurs approchées du temps de séjour troposphérique moyen, en régime stationnaire, d'éléments produits dans toute la troposphère.

III.4 - Conclusion

Ces études numériques montrent clairement que l'on ne peut pas considérer un temps de séjour unique pour tous les éléments dans la troposphère. Les temps de séjour troposphériques varient avec la position des sources et, lorsque l'on détermine des valeurs de τ au moyen d'éléments radioactifs, il est nécessaire de savoir de quelles sources ils sont représentatifs, si l'on veut comparer ou étendre les résultats.

A. Il faut cependant utiliser des éléments radioactifs ayant une période suffisamment longue, en rapport avec celle des phénomènes à mesurer. En effet, si la période radioactive est trop courte, l'élément ne pourra pas diffuser dans toute la troposphère et il ne sera représentatif que des phénomènes intervenant au voisinage de son niveau de production. Si la source est située près des zones d'élimination (descendants à vie courte de radon) les valeurs de τ seront trop faibles, et inversement si elle est éloignée de ces zones (^{32}P) les valeurs du temps de séjour seront trop élevées.

B. Les rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$, relatifs aux contenus troposphériques moyens, permettent d'estimer les temps de séjour d'éléments produits respectivement dans les basses couches et dans toute la troposphère.

Cependant la méthode de calcul ne tenant pas compte des flux échangés avec les couches voisines, ces rapports conduisent, dans le cas des temps de séjour dans les couches, à des valeurs supérieures à celles des éléments dont ils sont représentatifs.

C. Lorsque l'on calcule les temps de séjour à partir de résultats isolés (dans le temps et dans l'espace) ou en nombre insuffisant on ne peut plus considérer le système comme stratifié ni le régime comme indépendant du temps. Les temps de séjour apparents que l'on détermine alors sont très variables et peuvent difficilement être généralisés.

IV. EVALUATION PRATIQUE DES TEMPS DE SEJOUR

La détermination des temps de séjour dans la troposphère revient finalement à évaluer les conditions moyennes d'échange et de lessivage. Mis à part, les éléments radioactifs à période trop courte qui conduisent à des estimations faussées, tous les éléments sont pratiquement utilisables, à la condition de savoir interpréter et relier les valeurs obtenues, au moyen d'études comparatives sur modèles.

- Comme nous l'avons vu précédemment (cf. chapitre III), l'ensemble de mes résultats, dans les pluies et dans l'air à Toulouse, m'a permis de tirer l'ordre de grandeur des coefficients d'échange troposphériques moyens (K_z : de 3 à 6 m^2/s) et de lessivage (τ_1 : de 30 à 40 j).

- L'ensemble des mesures de ^{210}Po, dans l'air au niveau du sol et en altitude (BURTON & STEWART, 1960 ; PEIRSON et al., 1966 ; KAROL, 1970 ; JOSHI et al., 1969) (mesures à Toulouse), permet de chiffrer à environ 1.1×10^{-14} Ci, par cm^2 de colonne d'air verticale, la teneur troposphérique moyenne en ^{210}Pb aux latitudes moyennes de l'hémisphère nord. Compte-tenu du taux moyen de dépôt de : 0.23 at /cm^2.s (cf. chapitre III), on en déduit un temps de séjour troposphérique de 20 jours pour le ^{210}Pb, ce qui correspond tout à fait aux valeurs données par les modèles.

- La comparaison (tableau VI.6) des résultats les plus caractéristiques, obtenus dans la littérature et à Toulouse, avec les valeurs théoriques, données par les modèles en régime stationnaire, est en bon accord avec ces valeurs de K_z et τ_1.

- Enfin, les résultats moyens tirés du ^{90}Sr (30 à 50 j en été-automne), et représentatifs

Méthode	Mesure	Résultats à Toulouse	Résultats dans la littérature	Valeurs théoriques	Couche
Po/Pb	Air au sol	19 j (correction situation)	24, 40, 14	21 j	limite
Bi/Pb	Air au sol	—	(5 j)	14 j	limite
Po/Pb	Pluies	40 j	40, 39, 30, 33, 33	38 j	nuageuse
Bi/Pb	Pluies	—	29, 30	29 j	nuageuse
Be/P	Pluies	160 j	130, 170	150 j	nuageuse

TABLEAU VI.6 - *Temps de séjour dans des couches de la troposphère. Comparaison des résultats obtenus à Toulouse et des valeurs les plus caractéristiques citées dans la littérature, avec les valeurs théoriques données par les modèles en régime stationnaire (K_z = 3 m^2/s ; Λ_l = 1/40 j^{-1}).*

d'éléments produits de façon continue dans toute la troposphère, sont en bon accord avec les valeurs théoriques.

Il est possible de critiquer les valeurs des coefficients d'échange et de lessivage que j'ai utilisées. Il faut cependant remarquer que ce sont des valeurs souvent considérées dans la littérature et qui ont donné dans d'autres études des résultats très satisfaisants. D'autre part, les valeurs expérimentales elles-mêmes des temps de séjour ainsi que les écarts obtenus entre les différents éléments correspondent tout à fait aux résultats donnés par les modèles dans ces conditions opératoires. Il est donc permis, en l'absence d'informations nouvelles et plus précises, de considérer ces valeurs comme représentatives des conditions moyennes.

Les courbes théoriques de temps de séjour montrent que cela correspond alors, pour les rapports $^{210}Po/^{210}Pb$ et $^{210}Bi/^{210}Pb$, à des temps de séjour dans la troposphère de 45 et 25 jours respectivement, et pour les éléments stables, injectés entre le sol et la tropopause, à des valeurs de τ variant entre 20 et 100 jours environ. Les temps de séjour correspondant dans les couches sont, pour ces derniers, de l'ordre de 7 à 11 j dans la couche limite planétaire, de 10 à 20 j dans la couche nuageuse et de 50 à 80 j au-dessus.

V. CONCLUSION

La notion de temps de séjour, introduite pour calculer de manière simple le bilan d'un élément dans un domaine, n'a donc en général de signification qu'en régime stationnaire et pour un domaine stratifié. Ceci implique que l'on détermine en pratique les temps de séjour à partir de la valeur moyenne d'un nombre suffisamment important de mesures, réparties dans le temps et dans l'espace, en appliquant des relations mathématiques en rapport avec les caractéristiques du domaine étudié. Le temps de séjour perd sinon tout intérêt, en particulier si l'on essaie de calculer des valeurs instantanées à partir de résultats individuels.

Trop souvent confondue avec la durée de vie moyenne des particules dans le volume, la notion de temps de séjour est sans doute moins intéressante car elle dépend non seulement des caractéristiques du domaine étudié mais aussi de l'élément considéré et des conditions envisagées (régime stationnaire...).

Cependant, bien plus simple à estimer en pratique que la durée de vie moyenne, le temps de séjour reste très intéressant à considérer dans tous les problèmes généraux, en particulier dans les études de pollution globale pour estimer ou prévoir, dans l'air, les teneurs d'un élément en fonction de son rejet.

☆ ☆
☆

CONCLUSION GENERALE

Les éléments radioactifs à moyenne et longue périodes sont utilisés depuis plusieurs années pour étudier le comportement dans l'atmosphère des aérosols sur lesquels ils sont fixés. Ce sont surtout les produits de fission qui ont apporté les renseignements les plus intéressants sur les phénomènes de circulation, d'échange et d'élimination dans la stratosphère.

La troposphère, par contre, a été bien moins étudiée et le but de mon travail a été d'aborder l'étude des problèmes liés au transport et à l'élimination des aérosols dans la troposphère, en me servant de certains éléments radioactifs.

J'ai ainsi choisi de mesurer, simultanément et en un seul point, cinq éléments d'origines diverses (formés au niveau du sol, en altitude, ou dans la stratosphère), de manière continue et avec des temps de prélèvement courts, afin de pouvoir distinguer les variations dues aux changements des sources, aux phénomènes de transport horizontaux et verticaux, ou aux phénomènes de lessivage. J'ai interprété les résultats expérimentaux en utilisant des méthodes statistiques ou en effectuant des études de simulation numérique sur modèles.

Comme je l'ai déjà signalé lors de l'introduction, il était impossible de faire un tour complet des problèmes de formation, de transport et d'élimination, et je me suis limité à étudier un certain nombre de points qui me semblaient importants, soit parce qu'il étaient très controversés, soit parce qu'il n'avaient pas encore pu être traités.

La comparaison des résultats obtenus à Toulouse avec ceux d'autres stations montre bien que l'on peut tirer parti des mesures effectuées en un seul point. On obtient en effet des variations similaires, aussi bien à petite échelle avec des stations locales, qu'à grande échelle avec des stations éloignées dans la même bande de latitude. Cependant, si les variations sont toujours très concordantes pour des stations continentales, il semble que les mesures dans les stations maritimes, situées au milieu de l'océan, témoignent d'un ralentissement des échanges verticaux dans la basse troposphère, en été, au-dessus de la mer.

Les variations d'activité dans l'air des basses couches à Toulouse présentent des fluctuations importantes à l'échelle de quelques jours et une périodicité annuelle à plus grande échelle. Les concentrations des éléments dépendent à la fois de la variation des sources et des phénomènes de transport (horizontal vertical) et de lessivage. Selon les éléments étudiés, ces facteurs ont plus ou moins d'importance. Cependant, les phénomènes de lessivage, qui affectent à peu près de la même manière tous les éléments, ont une influence particulièrement importante aussi bien à petite échelle (discontinuités de lessivage) qu'à grande échelle (variation moyenne périodique).

Les concentrations des éléments cosmogéniques, ^{7}Be et ^{32}P, dans l'air au sol dépendent principalement des phénomènes de lessivage, car la variation annuelle de production se fait relativement peu sentir dans les basses couches. Ils présentent ainsi une variation périodique annuelle (amplitude d'un facteur 2 à 3), avec un maximum entre le printemps et le début de l'automne. Une telle variation avait déjà été signalée pour le ^{7}Be ; mes mesures permettent de la mettre en évidence également pour le ^{32}P.

La concentration du ^{90}Sr dépend, elle aussi, des phénomènes de lessivage mais aussi beaucoup de la variation de la source (arrivées stratosphériques en hiver et au printemps). La combinaison de ces effets donne une variation annuelle périodique dont l'amplitude est bien plus accusée (facteur 15), avec un maximum entre le printemps et le début de l'été, donc moins prolongé que dans le cas des ^{7}Be et ^{32}P.

La concentration du ^{210}Pb dépend non seulement des phénomènes précédents (lessivage, source) mais elle est influencée, de manière bien plus importante que pour les ^{90}Sr, ^{7}Be et ^{32}P, par les phénomènes de stabilité dans les basses couches. En effet, le ^{210}Pb provient du radon qui se dégage des continents, et il a une source continentale, lui aussi, située surtout dans la basse troposphère. Le ^{210}Pb à Toulouse est en pratique la somme de deux composantes : une composante à grande échelle variant avec l'origine moyenne de la masse d'air et une composante locale (provenant du radon local) dépendant fortement des conditions régionales (stabilité, lessivage,...). On observe donc pour cet élément une variation périodique annuelle mais dont le maximum se situe à la fin de l'automne.

Le ^{210}Po enfin, issu du ^{210}Pb, suit pour sa part les variations de la composante à grande échelle de cet élément, car sa formation est relativement retardée étant donné sa période. La variation annuelle du ^{210}Po est semblable à celle du ^{210}Pb, l'amplitude étant cependant moins accusée.

Les éléments cosmogéniques sont donc très intéressants pour évaluer l'influence des phénomènes de lessivage. Le ^{7}Be est à ce point de vue préférable au ^{32}P, car sa période est plus longue et qu'il est moins sensible à la durée des phénomènes de transport.

L'étude du rapport $^{90}Sr/^{7}Be$ permet ainsi de caractériser l'air d'origine stratosphérique, en minimisant ou éliminant l'influence du lessivage. On constate cependant que les augmentations rapides de ce rapport ne sont pas liées en général aux descentes rapides et récentes d'air stratosphérique. Il semble donc que les variations rapides de la source de ^{90}Sr dans les basses couches dépendent plus de celles des phénomènes troposphériques de transport (horizontal vertical) que de celles des phénomènes d'échange eux-mêmes entre la stratosphère et la troposphère.

Les variations des activités ou de leurs rapports permettent de suivre les mouvements zonaux ou méridiens des masses d'air, lorsque celles-ci correspondent à des variations de source ou de lessivage. Les fortes valeurs du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ sont par exemple caractéristiques à Toulouse de l'air maritime et celles du rapport $^{7}Be/^{32}P$ de l'air arctique ou polaire.

L'utilisation des éléments radioactifs naturels a été rendue délicate par la méconnaissance des processus de formation ou des taux réels de production.

L'origine du ^{210}Po dans l'air troposphérique a ainsi été souvent remise en question. Cette étude montre tout d'abord que les arguments utilisés pour prouver l'existence de sources complémentaires de ^{210}Po (temps de séjour différents avec les rapports $^{210}Bi/^{210}Pb$ et $^{210}Po/^{210}Pb$; estimations à partir du ^{226}Ra) ne sont pas fondés. La discussion des diverses sources envisagées dans la littérature montre qu'elles n'interviennent pas de manière sensible, du moins à Toulouse. L'origine stratosphérique est toujours négligeable ; les origines fossiles et telluriques peuvent intervenir en certains endroits, mais leur effet est toujours très localisé et n'a finalement pas d'importance réelle à l'échelle globale. Enfin, l'origine maritime semble à écarter. Mes résultats mettent par contre en évidence une augmentation du ^{210}Po avec les phénomènes orageux, mais cet effet reste lui aussi négligeable à l'échelle globale. Le ^{210}Po dans l'atmosphère provient donc bien de la seule désintégration du ^{210}Pb présent dans l'air.

Les taux de production des ^{7}Be et ^{32}P ont été à plusieurs reprises réajustés par rapport aux estimations initiales. J'ai montré que les dernières valeurs considérées devaient elles-aussi être révisées, étant donné les faibles valeurs instantanées et moyennes du rapport $^{7}Be/^{32}P$, et que le rapport entre les taux de production des ^{7}Be et ^{32}P à considérer était d'environ 37.

On observe pour le rapport $^{7}Be/^{32}P$, dans l'air au niveau du sol, une variation périodique annuelle (maximum en hiver) qui est liée à la variation des échanges verticaux et méridiens. En effet, étant donné l'augmentation importante de la production avec l'altitude, ce rapport est fortement influencé par les phénomènes de déplacement vertical de l'air. Les phénomènes de subsidence peuvent en particulier donner ensuite, en atmosphère calme, des augmentations très importantes de ce rapport ; c'est ainsi le cas pour les masses d'air arctiques, comme le montrent les mesures réalisées à Toulouse.

L'intensité des échanges verticaux moyens dans la troposphère est assez difficile à évaluer, car ces échanges englobent en fait des phénomènes très divers (ascendances, subsidences, turbulences, convection, zones d'inversion, couches à stabilité élevée...) qui varient dans le temps et dans l'espace. Les valeurs

moyennes considérées peuvent varier d'un facteur presque 10 selon les auteurs et l'époque envisagée. Certains auteurs considèrent ainsi la troposphère comme un milieu très bien mélangé, pratiquement homogène.

Mes résultats, dans l'air et les précipitations, montrent qu'il existe en fait des gradients accusés avec l'altitude pour la plupart des éléments. L'étude du rapport $^{7}Be/^{32}P$ indique que certaines masses d'air peuvent rester stables durant des périodes assez importantes. Les variations du ^{90}Sr laissent penser que les échanges verticaux sont ralentis l'été au-dessus des océans. Enfin, la répartition verticale du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ dans la troposphère permet de chiffrer à environ 3 à 6 m^2/s le coefficient d'échange vertical moyen dans la moyenne et haute troposphère, et 1/30 à 1/40 $jour^{-1}$ le coefficient de lessivage dans la couche comprise entre 2 et 6 km d'altitude.

Il semble donc finalement que la valeur moyenne de ces coefficients soit plus faible que certaines déterminations individuelles ne le laissaient supposer. Les variations moyennes annuelles restent cependant encore à préciser.

Le temps de séjour des éléments dans la troposphère est directement lié à leur comportement. Cette notion de bilan n'a cependant de signification réelle qu'en valeur moyenne, c'est à dire en considérant un domaine stratifié en régime stationnaire. Si le temps de séjour d'un élément dans un volume fermé s'exprime de manière relativement simple, sa détermination dans le cas d'une couche "ouverte" nécessite de tenir compte également des échanges avec les couches voisines.

Le temps de séjour troposphérique varie avec les éléments considérés. Il dépend principalement de la position de leur source vis à vis des phénomènes d'élimination (couche nuageuse, sol) et de l'intensité de ceux-ci.

Les éléments radioactifs utilisés conduisent à des temps de séjour différents et correspondant à leur source moyenne. Les ^{210}Pb et ^{210}Bi sont ainsi représentatifs d'éléments formés dans les basses couches de la troposphère, et les éléments cosmogéniques d'éléments formés dans les hautes couches ; le ^{210}Po est par contre représentatif d'éléments formés dans toute la troposphère. Les différents rapports d'activité sont utilisables pour estimer des temps de séjour ; le rapport $^{7}Be/^{32}P$ conduit cependant à des valeurs surestimées.

Lorsque les hypothèses de stationnarité ou de stratification ne sont plus applicables, ce qui est souvent le cas pour des déterminations expérimentales individuelles, les temps de séjour apparents alors obtenus peuvent être très différents.

Les valeurs moyennes des temps de séjour déterminés expérimentalement dans la troposphère ou dans les couches troposphériques, correspondent bien à ce que l'on peut attendre dans les conditions moyennes d'échange et de lessivage établies précédemment. Les temps de séjour dans l'ensemble de la troposphère sont de l'ordre de plusieurs dizaines de jours, c'est à dire des valeurs bien plus élevées que les "quelques jours" récemment avancés pour les éléments en général.

Les pertes relatives par les divers processus d'élimination dépendent de l'altitude de formation des éléments. Un élément formé près du sol sera éliminé principalement par dépôt sec alors qu'un produit introduit dans la haute troposphère sera surtout enlevé par les précipitations.

Les temps de séjour troposphériques varient ainsi, pour des éléments introduits continuement dans l'atmosphère, entre une vingtaine de jours pour ceux émis dans les basses couches et une centaine de jours pour ceux produits au niveau de la tropopause. Lorsque l'on veut utiliser la notion de temps de séjour pour un élément quelconque, il est donc nécessaire de considérer des valeurs relatives à la zone moyenne de formation de l'élément.

J'ai volontairement simplifié l'étude théorique des temps de séjour, en ne considérant que des processus d'élimination simples et des aérosols moyens, et les valeurs obtenues sont des valeurs moyennes. Il serait intéressant de faire intervenir aussi les phénomènes de coagulation (en considérant le problème non plus en masse mais en nombre), d'intéraction chimique ou ceux liés à la variabilité des granulométries, qui peuvent dans certains cas (polluants) jouer un rôle important.

Les résultats que j'ai obtenus apportent des renseignements intéressants sur le comportement des éléments dans la troposphère. Il serait cependant nécessaire de multiplier les expériences en altitude, pour réaliser des bilans plus exacts et suivre l'évolution des phénomènes.

Le cycle des éléments dans la troposphère est lié étroitement aux notions de temps de séjour. Celles-ci sont particulièrement intéressantes dans les problèmes de pollution globale où il est indispensable de pouvoir estimer ou prévoir les quantités de produits restant en

suspension dans l'air, sans être obligé d'aller chaque fois les mesurer dans toute l'atmosphère.

Cette étude permet de voir que les éléments restent finalement dans la troposphère bien plus longtemps que des études récentes ne le laissaient supposer.

☆ ☆
☆

ANNEXES

ANNEXE A-I

VARIATIONS D'ACTIVITE DANS L'AIR A TOULOUSE

ACTIVITES (10^{-14} Ci/M^3)
0.1
0
40
20
0
0.05
0
0.2
0
4
2
0
0.4
0.2
0
10
0
0.5
0
Po/Pb
Be/P
Sr/Be
^{210}Po
^{210}Pb
^{32}P
^{7}Be
^{90}Sr
J J A S O N D J F M A M J J A S O N D J F M A M J J A S O N D J F M A M J J A S O N
1966
1967
1968
1969

ANNEXE A-2

VARIATIONS D'ACTIVITE DANS L'AIR AU PIC DU MIDI ET A TARBES

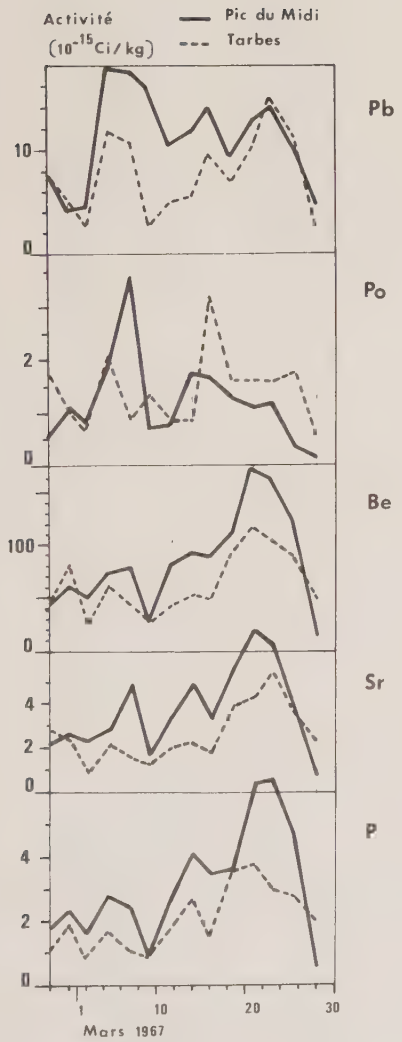

FIGURE I.A - *Variations des activités dans l'air au Pic du Midi et à Tarbes (Février - Mars 1967).*

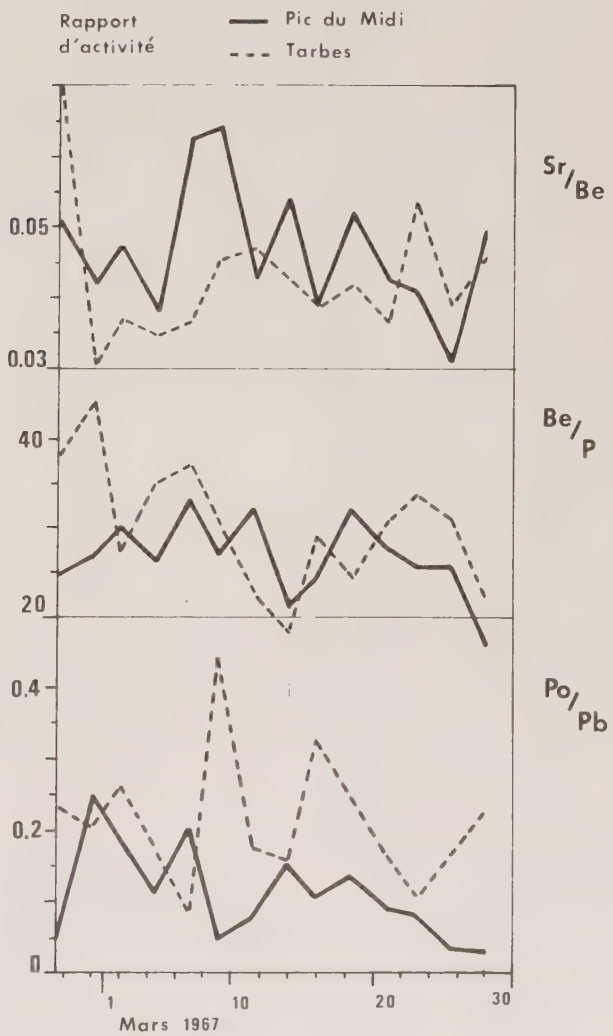

FIGURE 2.A - *Variation des rapports d'activité dans l'air au Pic du Midi et à Tarbes.*

ANNEXE A-3

MESURES DANS LES PLUIES (TABLEAUX DE RÉSULTATS)

PREMIÈRE PÉRIODE (activités en Ci/l)

Echantillon	Date	Pluviométrie (mm)	Po (10^{-12})	Pb (10^{-12})	Be (10^{-10})
1	03/02/66	1.5	1.73	x	1.34
2	7-8/02	2	0.70	0.92	x
3	09/2	2.24	0.38	6.3	0.55
4	10-11/02	3.35	0.72	2.68	0.51
5	11-12/02	4.40	0.55	1.35	0.51
6	13/02	8.8	0.33	0.43	0.42
7	14/02	12.4	1.93	2.32	0.39
8	16/02	6.8	1.16	0.65	0.16
9	19/02	4.8	0.33	2.79	0.35
10	22/02	5.3	0.54	1.20	0.27
11	28/02	2.1	0.33	7.20	0.94
12	28/02	2.1	0.38	0.18	0.13
13	04/03	6.95	0.48	3.06	0.65
14	12/03	0.85	1.13	7.82	0.78
15	23-24/03	4.35	1.48	5.31	0.52
16	24/03	1.67	1.58	2.84	0.38
17	25/03	0.56	1.15	6.38	0.79
18	26/03	1.82	0.34	2.04	0.31
19	28/03	1.1	0.50	2.75	0.41
20	28/03	2.1	0.30	8.46	1
21	28/03	0.9	0.23	6.33	0.76
22	28/03	0.75	0.45	1.56	0.47
23	02/04	6.7	0.18	8.49	0.72
24	05/04	2.5	0.66	4.2	0.30
25	7-8-9/04	31.2	1.41	7.52	0.73
26	13/04	4.1	0.59	6.43	0.49
27	15/04	4.9	0.27	4.69	0.46
28	20/04	16.8	0.42	5.43	0.44
29	20/04	8.2	0.20	7.51	0.51
30	24/04	6.70	0.49	6.04	0.96
31	25/04	2.20	0.65	3.50	0.50
32	27/04	6	0.40	2.44	0.63
33	02/05	13.8	1.57	17.20	1.95
34	05-06/05	12.3	0.36	10.6	0.53
35	06-07/05	6.35	0.44	3.97	0.34
36	7-8-9/05	9.1	0.60	1.28	0.28
37	09/05	4.9	0.28	1.05	0.23
38	12/05	1.2	0.15	3.92	0.55
39	12/05	6.4	0.72	4.27	0.76
40	12/05	2.7	0.54	x	0.41
41	12/05	0.76	0.42	x	0.12
42	18/05	10.8	0.66	10.65	0.56
43	18/05	0.88	0.69	14.85	1.09
44	18-19/05	8	0.20	3.48	0.30
45	21/05	0.76	1.01	8	0.64
46	04/06	5	0.62	12.5	0.81
47	05/06	32.3	0.39	3.47	0.33
48	8-9-10/06	27	0.21	2.77	0.24

DEUXIÈME PÉRIODE (activités en Ci/l)

Echantillon	Date	Pluviométrie (mm)	Po (10^{-12})	Pb (10^{-12})	Be (10^{-10})	P (10^{-12})	Sr (10^{-12})
1	28/09/66	18	1.01	4.35	0.82	1.74	x
2		2	0.11	1.1	0.34	0.41	x
3	29/09	1.53	0.16	1.5	0.28	0.61	x
4		0.61	0.31	2.02	0.52	1.04	x
5		3.18	0.37	3.13	0.56	0.75	x
6	30/09	2	0.30	8.20	1.03	1.43	x
7	01/10	1	0.27	2.20	0.25	1.14	1.05
8	04/10	30	1.06	9.65	0.91	1.33	0.76
9	8-9/10	17.7	0.17	4.80	0.44	0.52	x
10	11-12/10	23.6	0.77	2.85	0.19	0.90	0.68
11		2.4	0.63	8	0.45	2.30	3.05
12	14/10	1.32	0.16	1.60	0.21	1.08	0.36
13		1.25	0.18	0.33	0.20	0.49	0.23
14		0.15	0.68	0.73	0.21	0.46	0.26
15	15/10	15.6	0.17	1.37	0.45	1.24	0.86
16	19/10	5.45	0.19	5.60	0.81	2.62	4.7
17	25/10	0.71	1.30	9.85	0.80	2.50	2.94
18	25/10	14.1	0.70	6.02	0.44	0.99	0.5
19	25-26/10	10.2	1.47	13.20	1.28	2.15	x
20	28/10	2	1.14	11.90	1.16	0.67	1.92
21	29/10	1.9	0.74	16.40	0.89	0.70	x
22	31-1/10	1.9	0.82	3.30	0.23	1.01	x
23	4-5-6/10	11	0.64	3.60	0.35	1.19	x
24	09/11	1	0.77	2.74	0.21	0.68	0.55
25	16/11	12.5	1.22	6.04	0.49	x	0.85
26	18/11	7.6	0.80	3.84	0.36	0.41	x
27	20/11	0.7	0.88	5.46	0.30	0.56	x
28	23/11	2.9	0.71	3.3	0.35	1.28	x
29	25/11	0.82	0.67	3.7	0.38	0.48	1.02
30	28-29/11	10	0.81	3.23	0.14	0.43	0.17
31	30/11	1.8	0.33	0.82	0.17	1.02	3.76
32	2-3/12	21.5	1.1	4.24	0.40	1.22	0.91
33	03/12	10.6	0.21	0.72	0.14	0.82	0.51
34	6-7/12	22	0.86	4.13	0.23	0.47	0.43
35	09/12	1.1	0.39	1.17	0.11	0.70	0.95
36	10-11/12	21.6	0.58	1.42	0.15	0.46	0.24
37	13-12	21.2	0.73	1.76	0.24	0.63	0.75
38	14/12	5.9	0.23	1.08	0.11	0.80	0.3
39	20/12	2.2	2.04	3.84	0.26	0.77	1.01
40	22-23/12	3.27	0.69	2.24	0.24	0.95	1.17
41	23-24/12	3.48	0.83	1.97	0.28	0.99	x
42	27/12	3.94	2.15	2.35	0.28	0.98	x
43	29-30/12	2.27	0.66	2.7	0.80	1.72	x
44	4-5/01/67	6.5	1.45	6.3	0.80	1.48	x
45	6-7-8/01	0.88	1.1	2.97	0.26	1.22	x
46		10.8	0.6	1.54	0.12	2.68	x
47	20/01	2.3	2.9	9.95	0.55	2	1.51
48	21-22/01	12.9	1.35	3.38	0.12	0.46	0.16
49	24/01	12.1	1.93	2.91	0.20	1.15	0.76
50	15-16/02	11.9	5.73	9.6	0.51	1.23	0.87
51	18-19/02	1.2	1.43	3.18	0.28	1.16	1.66
52	25-26/02	4.5	0.91	6.74	0.55	1.41	1.75
53	02/03	2.3	0.49	1.47	0.24	1.56	0.94
54	06/03	7.5	1.11	4.82	0.30	1.44	0.65
55	09-10/03	5.01	0.14	3.8	0.18	0.39	1.26
56	12-13/03	7.1	1.4	1.6	0.28	0.81	0.82
57	18/03	1.2	2.03	6.9	0.51	2.26	9.9
58	26/03	1.82	1.14	4.2	0.37	1.78	4.8
59	26au29/03	8.5	1.03	3.2	0.32	0.57	1.15
60	29au31/03	9.7	1.67	5.7	0.57	0.42	1.28
61	03/04	2.97	0.64	1.9	0.20	0.49	0.65
62	06/04	2.6	0.66	1.9	0.26	0.70	0.66
63	10/04	1.85	1.35	11.4	0.96	0.91	4.99
64	21-24/04	3.12	2.6	10.5	0.60	0.85	2.88
65	25-26/04	11.3	1.2	5.35	0.55	0.79	1.44
66	02/05	14.2	2.3	13.6	0.46	0.82	0.91
67	06/05	1.21	1.25	6.56	0.48	1.84	5.8
68	17/05	5.86	5.5	12.1	0.96	1.91	3.12
69	17-18/05	9.35	2.8	6.3	0.98	1.11	1.96
70	22/05	4.52	2.1	7.1	0.71	2.00	0.62
71	23/05	3.45	1.6	3.9	0.29	0.85	2.52
72	25/05	8.07	0.93	4.6	0.25	1.17	0.83
73	28/05	2.09	3.16	9.55	0.93	4.12	6.56
74	31/05	1.21	3.18	7.05	0.81	1.35	3.28
75	7-8/06	42.4	4.54	19.5	1.42	1.68	2.6
76	8-9/06	9.8	3.12	15.5	1.17	1.20	2.8
77	19/06	5.17	1.46	9.46	0.50	0.76	2.54
78	26-27/06	11.6	3.41	11.1	0.48	1.09	0.92

ANNEXE A-4

MESURES EN ALTITUDE (TABLEAUX DE RÉSULTATS)

(activités en Ci/kg d'air)

Date	Altitude (m)	$^{90}Sr(10^{-15})$	$^{7}Be(10^{-14})$	$^{32}P(10^{-15})$	$^{210}Pb(10^{-14})$	$^{210}Po(10^{-15})$
14/10/68	0	2.90	4.90	2.10	4.09	10.50
	3600	5.45	8.60	2.20	0.75	3.40
	7300	12.10	15.50	6.50	1.66	3.80
16/10/68	0	2.34	6.00	1.50	1.20	3.00
	3600	8.20	10.50	4.65	0.70	4.10
	7300	18.40	20.20	6.70	1.92	7.40
17/10/68	0	1.53	5.80	1.80	1.26	3.10
	3600	2.35	5.40	1.43	0.43	2.30
	7300	10.10	15.80	4.50	1.52	7.30
01/05/69	1	1.12	2.80	1.15	1.37	
	1130	3.50	3.30	1.30	1.36	
	2380	16.10	6.35	1.41	2.64	
	3420	3.96	3.44	1.15	2.30	
	4580	4.10	5.35	1.40	1.68	
	5680	16.30	13.60	3.50	3.05	
	8250	47.00	20.20	4.20	6.53	
02/05/69	0	1.80	3.20	1.00	1.25	
	1020	3.50	7.16	2.00	3.28	
	2220	3.00	4.00	1.05	5.13	
	3440	5.00	11.40	2.34	1.54	
	4430	9.15	17.50	3.18	2.18	
	4600	9.60	15.00	3.00	2.78	
	5500	6.16	11.60	3.03	3.82	
05/05/69	0	-	3.40	2.50	0.42	
	5800	27.80	28.20	3.12	3.14	
	7000	8.00	7.60	2.44	6.25	
07/05/69	0	6.20	5.85	2.85	0.96	
	1460	4.20	3.30	1.45	1.22	
	4000	1.06	2.70	0.95	0.64	
	5900	7.90	9.20	2.30	1.52	
	6850	2.90	8.60	3.50	0.60	
	8250	7.00	9.00	3.20	1.50	
	9900	50.00	55.00	10.00	2.98	
16/10/69	0	1.35	7.50		4.50	
	1160	3.00	21.00		3.40	
	2670	3.50	33.00		1.84	
	4300	8.50	11.00		1.55	
	5970	16.30	16.50		3.30	
	7290	27.00	20.80		7.20	
17/10/69	0	1.33	6.70		3.70	
	1230	3.20	14.40		6.30	
	2820	2.40	4.80		2.50	
	4420	5.00	9.00		2.60	

ANNEXE B-I

METHODE D'ANALYSE CHIMIQUE DES ELEMENTS RADIOACTIFS

I. BUT

L'analyse chimique des éléments radioactifs a pour but d'isoler chaque radionucléide de manière à pouvoir le compter ensuite sélectivement.

II. PRINCIPE

L'échantillon à analyser se présente soit sous la forme d'un dépôt d'aérosols sur papier-filtre (Poëlman-Schneider jaune ; Arjomari 4004), soit sous la forme d'un volume d'eau de pluie de plusieurs dizaines de litres contenant les éléments en solution ou en suspension. Les radionucléides sont d'abord mis en solution (attaque acide), de manières diverses selon les milieux analysés, puis séparés successivement les uns des autres. Chaque élément est ensuite purifié et monté en source.

III. METHODE D'ANALYSE

III.1 - Attaque et séparation chimiques

Entraineurs et traceurs :

. Be : dissoudre 7.8 g de BeO dans HNO_3 concentré à chaud ; compléter à 1000 cc ;

. P : $PO_4H_2NH_4$ (5.6 g/l) ;

. Pb : $Pb(CH_3CO_2)_2$ (5 g/l)

. Sr : $Sr(NO_3)_2$ (7.2 g/l)

. ^{208}Po et ^{85}Sr : solutions d'activité spécifique de l'ordre de 100 cpm/cc.

Réactifs :

. réactif molybdique :

a/ molybdate d'ammonium : 300 g/l d'H_2O

b/ sulfate d'ammonium : 100 g/l d'HNO_3 (12 N) ; pour préparer le réactif verser lentement a/ dans b/ en agitant constamment; filtrer après 48 h et conserver à l'obscurité ;

. solution de lavage : nitrate d'ammonium (20 g/l) ; acidifier par quelques gouttes d'HNO_3;

. Trilon B : 150 g d'EDTA, dissouts dans 500 cc d'H_2O, sont neutralisés par NH_4OH jusqu'à P_H = 5 ; on dilue ensuite à 1000 cc ;

. solution saturée de carbonate de sodium ;

. solution de soude : 300 g/l ;

. solution de chlorure ferrique : 300 g/l.

A. CAS DES FILTRES POËLMANN-SCHNEIDER JAUNE (air au sol)

- Le filtre, partagé en morceaux, est placé dans un ballon de 1000 cc surmonté d'un réfrigérant ascendant et on ajoute :

. environ 60 cc d'HNO_3 concentré et 120 cc d'H_2O

. 10 cc exactement des solutions d'entraineurs de Be, P, Pb et Sr

. 1 cc exactement des solutions de ^{208}Po et ^{85}Sr ;

- on ajoute des billes de verre et on chauffe à reflux. Au bout de 30', on ajoute 10 cc de brome (solution chloroformique) avec précautions et on poursuit l'attaque durant 2 heures;

- on filtre ensuite sur Büchner (filtre rapide) en rinçant à plusieurs reprises le résidu par H_2O. La solution est placée dans un bécher de 600 cc et concentrée jusqu'à sec ;

- après refroidissement, on attaque successivement à chaud, en allant chaque fois jusqu'à sec, par :

. 3 fois 5 cc d'HNO_3 concentré

. 3 fois 5 cc d'eau régale

. plusieurs fois 5 cc d'HNO_3 concentré

(jusqu'à fin de vapeurs rousses)

. 2 fois 6 cc d'HCl concentré ;

- on reprend finalement le résidu par 11 cc d'HCl concentré et 120 cc d'H_2O ; on fait bouillir, en ajoutant du chlorhydrate d'hydrazine (2 g), jusqu'à décoloration de la solution et on complète à 200 cc ;

- on transvase le liquide dans un bécher de 250 cc, dans lequel on place un petit disque d'argent (diamètre 32 mm), collé sur une plaque de verre afin de limiter le dépôt à une seule face. On dépose le Po sur argent durant 2h 1/2, en chauffant au bain-marie et en agitant ;

- on remet la solution dans le bécher de 600 cc avec 10 cc d'HNO_3 et on va à sec. On termine l'oxydation, par des portions de 5 cc d'HNO_3, jusqu'à fin des vapeurs rousses. On reprend à deux reprises par 8 cc d'HCl en allant à sec. Après refroidissement, le résidu est repris par 25 cc d'HCl (2N) et on fait bouillir 5';

- après refroidissement, on centrifuge et on récupère la solution dans un bécher propre. On rince le résidu par 10 cc d'HCl (2N), en le mettant en suspension et on le centrifuge. Le résidu est à jeter. On joint le liquide de rinçage à la solution principale et on fait passer sur une résine Amberlite anionique IRA 400 (forme Cl^-) -colonne de 1 cm de diamètre et de 20 cm de hauteur- préalablement lavée par 20 cc d'HCl (2N) , à la vitesse de 3 cc/minute environ . On lave ensuite la résine avec 20 cc d'HCl (2N) et on joint ces eaux à la solution principale . Le Pb , retenu sur la résine , reste à éluer et à purifier;

- on concentre la solution jusqu'à sec , en faisant attention aux projections. On reprend par 25 cc d'H_2O et 2 cc d'HNO_3. On fait bouillir jusqu'à l'obtention d'une solution claire, et on ajoute lentement 15 cc de réactif molybdique et 3 cc d'NH_4OH ; on laisse reposer 3', on agite ensuite doucement durant 30' et on laisse encore reposer au moins 2 heures ;

- on centrifuge le précipité et on recueille la solution dans un bécher propre. On lave le précipité, en le mettant en suspension, avec la solution de nitrate d'ammonium ; on centrifuge et on joint les eaux de lavage à la solution principale. Le précipité contient le P à purifier ;

- on neutralise la solution par NH_4OH (excès); on ajoute 15 cc de solution de carbonate de sodium et on fait chauffer 5'. On centrifuge le précipité contenant les Be et Sr, et on jette la solution ;

- on extrait le précipité à deux reprises par la solution de soude concentrée (40 cc) ; on centrifuge chaque fois et on récupère le liquide dans un bécher propre. Le précipité restant contient le Sr à purifier ;

- la solution est neutralisée par HCl ; on ajoute 15 cc de Trilon B et on fait bouillir 5'. On précipite le Be par NH_4OH, on agite 5' et on centrifuge. La solution est à jeter ; le précipité contient le Be à purifier.

B. CAS DES FILTRES ARJOMARI (air en altitude)

La procédure est identique à la précédente ; cependant, afin d'augmenter le rendement de récupération, le résidu (§.3) restant après l'attaque à reflux est séché à l'étuve, calciné à 500°C et attaqué par 20 cc d'eau régale. La solution est ensuite jointe à la solution principale pour la fin de l'attaque oxydante et la suite de l'analyse.

C. CAS DES EAUX DE PLUIE

- Dans la bonbonne de polyéthylène où sont recueillies les eaux de pluie, on ajoute 10cc de HNO_3, 10cc de solution de chlorure ferrique, 10cc exactement des solutions d'entraineurs de Be, P et Pb et 1 cc de celles des radiotraceurs (^{208}Po ; ^{85}Sr). On agite pour homogénéiser et on laisse s'équilibrer durant 4 heures (échange isotopique) ;

- on ajoute ensuite 20 cc d'NH_4OH concentré et 10 cc de solution saturée de carbonate de sodium. On agite et on laisse décanter durant une nuit. On siphone le liquide surnageant clair et on décante le précipité dans les béchers de 1000 cc. On filtre ensuite sur Büchner, avec un filtre rapide sans cendres. Le précipité contient toutes les activités et les entraineurs ;

- on sèche le précipité à l'étuve et on l'incinère durant I2h à 450°C. Le résidu est repris par 20 cc d'HCl et on ajoute 10 cc de la solution d'entraineur de Sr. On fait chauffer durant 20', en agitant ; on centrifuge et on rince le résidu par HCl (8N) ;

- la solution est mise dans une ampoule à décanter et on extrait sélectivement le Fer à 3 reprises, par 40 cc d'éther, en refroidissant. La phase organique, contenant la majeure partie du Fer, est à jeter ;

- la solution acqueuse est évaporée, doucement et avec précautions sur plaque chauffante, jusqu'à sec. On reprend par 10 cc d'HCl, on ajoute 1 g de chlorhydrate d'hydrazine et on dilue à 100 cc. On fait bouillir jusqu'à décoloration, on complète à 200 cc et on procède comme précédemment au dépôt du Po sur argent ;

- on ajoute ensuite 10 cc de HNO_3 concentré

dans la solution et on évapore jusqu'à faible résidu. On insolubilise alors le Sr et le Pb dans 20 cc d'HNO_3 fumant ;

- on centrifuge le précipité contenant les Pb et Sr (cf. séparation plus loin). La solution est concentrée jusqu'à faible résidu puis diluée à 50 cc. On précipite alors comme précédemment le P par le réactif molybdique ;

- après centrifugation du précipité contenant le P, la solution est isolée et on précipite le Be par 15 cc de NH_4OH concentrée. On fait chauffer 5' et on centrifuge. Le Be est extrait du précipité par 2 fois 20 cc de solution de soude concentrée. Le précipité restant (Fer...) est à jeter ;

- la solution contenant le Be est neutralisée par HCl ; on ajoute 15 cc de Trilon B et on fait bouillir 5'. On reprécipite le Be par NH_4OH on agite 5' et on centrifuge. La solution est à jeter. Le précipité contient le Be à purifier ;

- le précipité de nitrates de Pb et Sr est dissout à chaud par 30 cc d'HCl (2N) ; on centrifuge si besoin est. On sépare ensuite le Pb comme précédemment par passage sur résine Amberlite ;

- la solution ayant traversé la résine est concentrée jusqu'à faible résidu. On dilue ensuite à 50 cc et on précipite le Sr, en milieu basique, par 15 cc de solution de carbonate de sodium. Le précipité est centrifugé. Il contient le Sr à purifier.

III.2 - Purification des éléments

A. POLONIUM

Le dépôt sur argent du Polonium constitue du même coup une source excellente pour la spectrométrie α.

- Cependant, dans le cas où la plaque d'argent est noircie ou attaquée et ne se prête pas à une bonne spectrométrie, on la dissout dans 5 cc d'HNO_3 et on concentre à sec par chauffage. On reprend par 50 cc d'H_2O et on fait bouillir.

- On ajoute lentement 10 cc d'HCl, sans arrêter l'ébullition que l'on poursuit encore 10'. On filtre sur filtre rapide et on lave le précipité avec H_2O. On ajoute 1 g de chlorhydrate d'hydrazine, on dilue à 200 cc et on redépose le Polonium comme précédemment.

B. LE PLOMB

Réactifs

. solution tampon : acétate d'ammonium (35g), acide acétique (30 cc)et compléter à 1000 cc ;

. solution de chromate de potassium : 100g/l.

- on élue par 80 cc d'H_2O le Plomb retenu sur la résine Amberlite, en recueillant la solution dans un bécher de 100 cc. On ajoute 10cc d'HNO_3, 5 g de nitrate d'ammonium, 0.5 g de nitrate de cuivre et on complète à 100 cc. On chauffe à ébullition ;

- l'appareil d'électrolyse est branché en cathode centrale (tournante) ; on cuivre préalablement celle-ci et on rince les électrodes par H_2O ;

- on branche la tension avant de placer le bécher contenant la solution et on électrolyse sous 4 ampères, en agitant et à chaud, durant 30'. On enlève le bécher, sans couper l'électrolyse.et on lave les électrodes par HNO_3 dilué (1/10) puis par H_2O ;

- on place le panier de platine, sur lequel s'est déposé le Plomb, dans un bécher propre et on dissout le PbO_2 par 10 cc d'HCl (2N). On retire le panier, on dilue à 50 cc et on chauffe jusqu'à ébullition;

- on neutralise la solution par NH_4OH concentré, on ajoute 5 cc de solution tampon et on précipite le Plomb par 10 cc de chromate de potassium. On chauffe 15' à ébullition et on centrifuge le précipité ;

- on lave deux fois le précipité, en le mettant en suspension, par de l'acide acétique dilué (1/20) puis à deux reprises par de l'alcool. On remet le précipité en suspension dans 1 cc d'alcool et on le dépose sur une plaque tarée avec une pipette, en évaporant le liquide sous épiradiateur ;

- on sèche 1/2 heure à l'étuve, et après gravimétrie, on stabilise la source en prenant la plaque en sandwich entre deux feuilles de scotch.

C. PHOSPHORE

Réactifs

. solution d'acide acétique à 100 g/l ;

. mélange magnésien : dissoudre 50 g de chlorure de magnésium et 100 g de chlorure d'ammonium dans 500 cc d'H_2O. Ajouter 3 cc d'NH_4OH ; laisser reposer une nuit ; filtrer si besoin est. Rendre peu acide. Compléter à 1000 cc.

- On dissout le précipité de phosphomolybdate par 10 cc d'NH_4OH. On ajoute 2 gouttes de bleu de bromothymol (indicateur coloré), 5 cc d'acide citrique et on neutralise par HCl jusqu'à virage au jaune ;

- on ajoute 8 cc de solution magnésienne, on repasse en milieu basique par NH_4OH concentré (virage au bleu) et on ajoute encore 5 cc d'NH_4OH. On agite 1 heure et on laisse reposer le précipité au moins deux heures ;

- on centrifuge le précipité et on le redissout par 1 cc d'HCl. On ajoute 5cc d'acide citrique, 5 cc de solution magnésienne et on reprécipite le phosphate comme précédemment par 5 cc d'NH_4OH ;

- on filtre, après repos, sur filtre fin sans cendres (Whatman bleu) et on lave par NH_4OH diluée (1/20). On sèche à l'étuve et on incinère à 1100°C durant 4 heures ;

- après refroidissement, on met le phosphate en suspension dans 1 cc d'alcool et on le monte en source de la même manière que pour le Plomb.

D. BERYLLIUM

Réactifs

. solution tampon (cf. précédemment)

. solution de Trilon B (cf. précédemment)

. solution d'acétate d'ammonium : 150g/l

. solution de lavage : à 50 g de solution tampon par litre.

- Le précipité d'hydroxyde de Be est dissout par HCl concentré. On transvase dans un bécher de 250 cc et on dilue à 100 cc. On ajoute 10 cc de Trilon B, on chauffe à ébullition et on reprécipite le Béryllium par NH_4OH. On centrifuge.

On peut à ce stade effectuer une purification supplémentaire, facultative dans le cas général.

.pour cela, on dissout le précipité par quelques gouttes d'HCl, on ajoute 4cc de solution tampon, 5cc de Trilon B. On ajuste le P_H à 5.5-6 par NH_4OH. On transvase dans une ampoule à décanter, on ajoute 4 cc d'acéthyl-acétone et on extrait à 3 reprises le chélate par des fractions de 10 cc de benzène ;

.la phase benzènique est lavée 2 fois par 30 cc de Trilon B dilué (1/5), puis par 40 cc d'H_2O. On réextrait le Béryllium à trois reprises par 15 cc d'HCl (6N).

- Le précipité, ou la solution contenant le Béryllium, est additionné de 8 cc d'acide perchlorique (dissolution dans le cas du précipité). On transvase dans un bécher de 250 cc et on évapore par chauffage ;

- lorsque l'acide perchlorique distille (vapeurs blanches), on couvre avec un verre de montre et on va à sec. Après refroidissement on ajoute 1.5cc d'acide phosphorique et 50 cc d'H_2O. On fait bouillir jusqu'à dissolution complète ;

- on ajoute 5 cc de Trilon B et on amène à P_H = 3 par NH_4OH concentré. On dilue à 100 cc. On ajoute 10 cc de solution d'acétate d'ammonium (P_H = 5) ce qui précipite le phosphate de Be et d'ammonium ;

- on fait bouillir avec précaution , jusqu'à ce que le précipité devienne fin et se dépose au fond. On centrifuge, on redissout par 1 cc d'acide phosphorique et on reprécipite comme précédemment ;

- on centrifuge le précipité, on le lave par 50 cc de solution de lavage en agitant durant 15' et on filtre sur filtre fin sans cendres. On lave par 30 cc de solution de lavage ;

- le filtre est séché à l'étuve et incinéré à 1100°C durant 8 heures. Après gravimétrie, on place le pyrophosphate de Be dans un petit tube de verre pour le comptage.

E. STRONTIUM

Réactifs

. solution de soude : 300 g/l

. solution saturée de carbonate de sodium

. solution de chlorure ferrique : 300g/l

. solution de chlorure de lanthane : 40 g/l

. solution tampon (cf. précédemment)

. solution étalonnée d'Yttrium à 6 mlg d'Y/cc.

- On dissout le précipité de carbonate de Sr par 5 cc d'HCl. On dilue et on fait chauffer pour bien chasser le CO_2. On passe en milieu basique et on centrifuge dans le cas où un précipité se forme (résidu d'oxydation des filtres). On précipite le Strontium dans la solution par 5cc de soude et 10 cc de solution de carbonate de sodium. On fait chauffer 10' et on centrifuge ;

- on ajoute 15 cc de HNO_3 fumant au précipité, on agite et on centrifuge le Strontium insolubilisé ;

- on dissout le précipité avec 20 cc d'H_2O, on ajoute 2 gouttes de solution de chlorure ferrique et on précipite le Fer par NH_4OH. On centrifuge et on acidifie la solution par HCl ; on ajoute 1 cc de solution de lanthane et on précipite l'hydroxyde de La par NH_4OH. On centrifuge et on recommence cette purification ;

- on reprécipite ensuite le Strontium dans la solution, comme précédemment, par la soude et le carbonate de sodium. On chauffe à ébullition et on centrifuge dans un petit tube à hémolyse ;

- on effectue la spectrométrie γ (détermination du rendement chimique du Strontium) et on attend durant 20 jours que l'équilibre soit réalisé entre le ^{90}Sr et son descendant l'^{90}Y ;

- on reprend ensuite le précipité par 1 cc d'HCl et on ajoute 1 cc exactement d'entraineur d'Yttrium. On agite et on laisse 30' au bain-marie pour réaliser l'équilibre isotopique ;

- on transvase dans un tube conique de 25 cc et on précipite l'Yttrium par 4 cc d'NH_4OH. On centrifuge, en notant ce temps comme temps 0 de la séparation de l'^{90}Y ;

- on redissout le précipité par 3 gouttes d'HCl, on dilue et on reprécipite l'Yttrium par NH_4OH. On centrifuge ;

- on dissout le précipité par 3 gouttes d'HCl. On ajoute ensuite 2 cc de solution tampon, 3 gouttes d'NH_4OH, 10 cc d'H_2O et 4 cc de solution d'acide oxalique. On laisse le précipité se développer 5' et on centrifuge ;

- on lave 2 fois par H_2O, une fois à l'alcool et une fois à l'éther, et on monte en source comme dans le cas des Plomb et Phosphore.

☆ ☆
☆

ANNEXE B-2

DOSAGE DES PLOMB ET PHOSPHORE STABLES

1. BUT

Les teneurs souvent importantes de l'air au niveau du sol à Toulouse, en Plomb et Phosphore stables, nécessitent la mesure des concentrations de ces éléments dans l'air. On procède donc, parallèlement au prélèvement principal d'air destiné à l'analyse des produits radioactifs, à un pompage d'air moins important (débit 7 à 8 m^3/h) sur un filtre Millipore RA (efficacité : I). La quantité prélevée (durée moyenne de 2 jours) correspond donc à peu près à 400m^3 d'air.

II. PRINCIPE

On procède à une attaque oxydante du filtre et on dose ensuite les Pb et P par colorimétrie, selon une procédure dérivée de celles des méthodes de CHARLOT (1963).

III. METHODE D'ANALYSE

III.1 - Attaque du filtre

- On place le filtre dans un petit bécher de 50 cc bien sec ; on ajoute 1 cc d'acide perchlorique et on couvre avec un verre de montre;
- on chauffe à douce chaleur, sur une plaque chauffante, jusqu'à ce que le filtre soit complètement attaqué et la solution décolorée (éviter cependant d'aller trop loin et de former des pyrophosphates);
- après refroidissement, on reprend par 20 cc d'eau et 5 gouttes d'acide nitrique concentré. On fait bouillir 5 à 10' et on centrifuge dans un tube conique, en rinçant le bécher et le verre de montre;
- on transvase dans une fiole jaugée de 25 cc on complète au volume avec H_2O et on agite pour homogénéiser;
- on prélève exactement 10 cc de solution que l'on place dans un bécher de 50 cc ; on évapore à sec en faisant attention aux projections;
- on reprend, après refroidissement, par 20cc d'H_2O et 1 goutte d'acide nitrique concentré, et on fait bouillir 5';
- cette solution servira pour le dosage du Plomb ; la solution restant dans la fiole (15cc) sera utilisée pour le dosage du Phosphore.

III.2 - Colorimétrie du Plomb

Réactifs :

. ammoniaque concentrée ;

. solution de cyanure ammoniacal : mélanger 100 cc d'NH_4OH (1/2), 20 cc de sulfite de sodium (10 g/l) et 20 cc de cyanure de potassium (50 g/l) ;

. solution de dithizone : dissoudre 25 mlg de dithizone dans 100 cc de chloroforme ; purifier en éliminant les produits d'oxydation ; compléter à 1000cc avec du chloroforme.

- On transvase le contenu du bécher dans une ampoule à décanter, on rince le bécher et le verre de montre par H_2O ; on ajoute 2 cc d'NH_4OH et 40 cc de solution de cyanure ammoniacal;
- on homogénéise, on ajoute 20 cc de solution chloroformique de dithizone, et on agite 2'. On décante la phase chloroformique, on centrifuge, pour bien séparer les gouttelettes de solution acqueuse pouvant rester en suspension, et on transvase dans le tube de mesure;
- on effectue la colorimétrie à 510µ, dans un délai maximum de 2 heures, car la coloration

n'est pas très stable (faire un blanc).

III.3 - Colorimétrie du Phosphore

Réactifs :

. molybdate d'ammonium à 10 % ;

. vanadate d'ammonium : en dissoudre 5g dans 500 cc d'eau chaude. Refroidir, ajouter 40 cc d'acide nitrique concentré ; amener à 1000 cc.

- A la solution demeurant dans la fiole jaugée, on ajoute de manière exacte 2 cc d'acide nitrique (1/2), 1 cc de solution de molybdate et 1 cc de solution de vanadate, et on complète à 25 cc;

- on agite, on laisse la coloration se développer (30') et on effectue la colorimétrie à 460µ (faire un blanc).

(N.B. : si la densité optique est inférieure à 0.100, opérer à 420 µ).

☆ ☆
☆

ANNEXE C-I

CORRECTIONS APPORTEES AUX COMPTAGES

Le comptage des sources purifiées permet de déterminer les activités des éléments, quelques jours après la fin (ou la date) du prélèvement. Etant donné les périodes radioactives de certains éléments, il y a lieu dans certains cas d'effectuer des corrections diverses sur les activités brutes afin de remonter aux valeurs initiales. Le tableau suivant résume les corrections à apporter aux comptages selon la nature du prélèvement et l'élément considéré.

I. DECROISSANCE ENTRE DEUX COMPTAGES SUCCESSIFS (^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Y)

On effectue, de manière systématique pour les ^{32}P et ^{90}Y et occasionnelle pour le ^{7}Be (contamination éventuelle), deux comptages séparés dans le temps (espacement variable selon la période de l'élément). Le deuxième comptage ne sert en général qu'à contrôler la pureté de la source, mais lorsque l'échantillon est suspecté de présenter une petite contamination à longue période (décroissance moins rapide que la normale), on calcule alors l'activité corrigée A_1, ramenée au temps t_1, par la relation :

$$A_1 = \frac{(X_1 - X_2)}{(1 - e^{-\lambda(t_2 - t_1)})}$$

avec :

X_1 et X_2 : comptages aux temps t_1 et t_2, après la fin du prélèvement (^{7}Be, ^{32}P) ou la séparation (^{90}Y)

λ : constante radioactive

	Air et pluie			Air
Elément	Décroissance entre 2 comptages successifs	Décroissance avant le comptage	Formation entre la fin du prélèvement et la séparation	Variation durant le prélèvement
^{210}Po	-	oui	oui	formation
^{210}Pb	-	-	-	-
^{7}Be	oui	oui	-	décroissance
^{32}P	oui	oui	-	décroissance
^{90}Y (^{90}Sr)	oui	oui	-	-

II. DECROISSANCE AVANT LE COMPTAGE (^{210}Po, ^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Y)

Les activités décroissant entre la fin du prélèvement (^{7}Be, ^{32}P) ou la séparation (^{210}Po, ^{90}Y) et le comptage, on calcule les activités corrigées A_c, ramenées à la fin du prélèvement ou à la date de la séparation chimique, selon la formule :

$$A_c = \frac{A_1}{e^{-\lambda t_1}}$$

(A_1, t_1 et λ ayant les mêmes définitions que précédemment)

III. CORRECTIONS DE FORMATION (^{210}Po)

Le ^{210}Pb présent dans l'échantillon continue à donner du ^{210}Po -par l'intermédiaire du ^{210}Bi- jusqu'au moment de la séparation chimique du ^{210}Po (dépôt sur argent). On effectue la correction en deux temps.

- Formation entre la fin du prélèvement et la séparation (air et pluie) :- On fait l'hypothèse que les activités des ^{210}Pb, ^{210}Bi et ^{210}Po présentent à l'origine le même déséquilibre et on calcule une valeur approchée du rapport $^{210}Bi/^{210}Pb$, à partir du rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ (avec l'activité A_c pour le ^{210}Po). Au moyen des équations de formation du ^{210}Po (pour l'intervalle de temps θ entre la fin du prélèvement et la séparation), on détermine alors une première valeur corrigée A'_c de l'activité du ^{210}Po, ramenée à la fin du prélèvement. On recommence le calcul avec cette valeur A'_c et par approximations successives on obtient la valeur corrigée du ^{210}Po. Cette correction peut ainsi atteindre 15% pour un rapport $^{210}Po/^{210}Pb$ initial de 0.10 et un temps d'attente θ de 8 jours.

- Formation durant le prélèvement (cas de l'air) :- On suppose ici aussi le même déséquilibre entre les activités des ^{210}Pb, ^{210}Bi et ^{210}Po et on considère de plus que leurs concentrations dans l'air restent constantes pendant toute la durée du prélèvement. On remonte à la valeur initiale du ^{210}Po dans l'air par un calcul analogue au précédent, en tenant compte toutefois de l'augmentation continue, durant le pompage, de la source de ^{210}Pb déposée sur le filtre.

IV. DECROISSANCE DURANT LE PRELEVEMENT (^{7}Be, ^{32}P)

Le temps de prélèvement T n'étant pas toujours négligeable devant les périodes radioactives de ces éléments, il y a lieu enfin d'apporter, pour certains éléments, une correction à la valeur A_c de l'activité. On montre ainsi que l'activité corrigée finale A_o s'exprime par la relation :

$$A_o = \frac{A_c \cdot \lambda \cdot T}{(1-e^{-\lambda T})}$$

(avec λ : constante radioactive de l'élément).

☆ ☆

☆

ANNEXE C-2

CALCUL D'ERREURS

La formule générale permettant de calculer les activités X est de la forme :

$$X = \frac{K.A_o}{P.r_1.r_2}$$

avec :
A_o : comptage corrigé
P : volume d'air filtré ou de pluie recueillie
r_1 : rendement chimique
r_2 : rendement de comptage
K : constante

L'erreur relative sur X est donc la somme des erreurs relatives sur chacun des termes de la relation :

$$\frac{\Delta X}{X} = \frac{\Delta K}{K} + \frac{\Delta r_1}{r_1} + \frac{\Delta r_2}{r_2} + \frac{\Delta P}{P} + \frac{\Delta A_o}{A_o}$$

I. ERREUR SUR K

Le facteur K regroupe un certain nombre de constantes (erreur relative nulle) ; dans le cas de l'air, il dépend aussi de l'efficacité du filtre ($\Delta F/F$ = 1 %). On a donc :

$$\frac{\Delta K}{K} = \begin{cases} 1\% & \text{air} \\ 0 & \text{pluie} \end{cases}$$

II. ERREUR SUR r_1

L'erreur relative sur le rendement chimique est en général la somme de trois termes :

$$\frac{\Delta r_1}{r_1} = \frac{\Delta p}{p} + \frac{\Delta x}{x} + \frac{\Delta v}{v}$$

avec :
p : gravimétrie de la source
x : titre de la solution d'entraineur
v : volume ajouté.

Chacune des erreurs partielles étant de l'ordre de 0.5%, l'erreur totale :

$$\frac{\Delta r_1}{r_1} = 1.5\ \%$$

Cas du Polonium : Le rendement chimique est dans ce cas déterminé au moyen du ^{208}Po. On a :

$$\frac{\Delta r_1}{r_1} = \frac{\Delta e}{e} + \frac{\Delta E}{E}$$

avec :
e : activité en ^{208}Po de la source
E : activité en ^{208}Po introduite initialement (un étalon est réalisé pour chaque analyse et compté en même temps que la source).

Etant donné les activités moyennes de e et de E ($\sim$ 100 cpm) et les temps de comptage de l'ordre de 100', on peut chiffrer à 1% chacune des erreurs. D'où : $\Delta r_1/r_1 = 2\%$.

Cas du Strontium : Le ^{90}Sr est déterminé au moyen de son descendant l'^{90}Y. Dans le rendement total rentre donc, non seulement le rendement de l'Y, mais aussi celui du Sr, mesuré au moyen du ^{85}Sr, et dont l'erreur est équivalente à celle commise sur le ^{208}Po. On a donc au total :

$$\frac{\Delta r_1}{r_1} = 3.5\ \%$$

III. ERREUR SUR r_2

Compte tenu de la précision des étalonnages réalisés, on peut chiffrer cette erreur pour tous les types de comptages à environ 1 %.

IV. ERREUR SUR P

Dans le cas de l'air, l'erreur sur le volume total dépend de la précision du débitmètre à diaphragme, de l'ordre de 2%. Le volume de pluie est déterminé par pesée à 1% près. D'où :

$$\frac{\Delta P}{P} = \begin{cases} 2\% & \text{air} \\ 1 & \text{pluie} \end{cases}$$

V. ERREUR SUR A_o

L'erreur sur le comptage dépend de l'activité totale enregistrée et du bruit de fond. On a :

$$N = N_g - B \cdot t$$

avec :
N_g : comptage global
B : bruit de fond
N : comptage de l'élément
t : temps de comptage

D'où :

$$\Delta N = \sqrt{N_g} + \sqrt{B.t}$$

et : $$\frac{\Delta N}{N} = \frac{\sqrt{N_g} + \sqrt{B.t}}{N}$$

L'erreur due aux corrections diverses d'activité (cf. annexe C-1) est difficile à estimer mais on peut la négliger en général, étant donné l'ordre de grandeur des corrections elles-mêmes. Donc :

$$\frac{\Delta A_o}{A_o} = \frac{\Delta N}{N}$$

Elément	Air	Pluie
Po	4 %	4 %
Pb	1	2
Be	1.5	2
P	3	5
Sr	3	5

TABLEAU I - *Erreurs relatives sur les comptages.*

Le tableau 1 donne pour les différents éléments l'ordre de grandeur des erreurs relatives moyennes sur le comptage, dans l'air et dans la pluie.

Au total, l'erreur relative commise sur l'activité spécifique X sera donc (tableau 2) :

(Ces valeurs correspondent évidemment à des erreurs moyennes, l'erreur sur certaines analyses pouvant être supérieure à cause de l'indétermination plus élevée des comptages).

Elément	Air	Pluie
Po	10 %	8 %
Pb	6.5	5.5
Be	7	5.5
P	8.5	8.5
Sr	10.5	10.5

TABLEAU 2 - *Erreurs relatives sur les déterminations des activités.*

☆ ☆
☆

ANNEXE D

MISE AU POINT D'APPAREILS DE PRELEVEMENT EN ALTITUDE

J'ai choisi de réaliser les mesures en altitude dans la troposphère en utilisant des avions légers, pour effectuer les prélèvements, de préférence aux ballons d'emploi plus délicat.

Les concentrations des éléments augmentent en général avec l'altitude, mais elles restent encore très faibles et il est nécessaire, en ce cas également, de filtrer des volumes d'air importants, compris entre plusieurs centaines et quelques milliers de kg d'air selon l'altitude envisagée. L'avion étant un vecteur onéreux, il importe de limiter le plus possible la durée des prélèvements. Il n'est pas possible d'embarquer de turbines à fort débit, car l'énergie électrique et le poids sont limités. Je me suis donc orienté vers des capteurs légers et profilés, placés sous les ailes, et utilisant la pression dynamique créée par la vitesse de l'avion, seul dispositif capable d'assurer des débits d'air suffisants (CROZAT, 1969 ; JULIAN, 1970). Le calcul du débit fait appel à divers paramètres :

- filtre utilisé (efficacité, perte de charge) ;
- caractéristiques géométriques du dispositif;
- performances de l'avion.

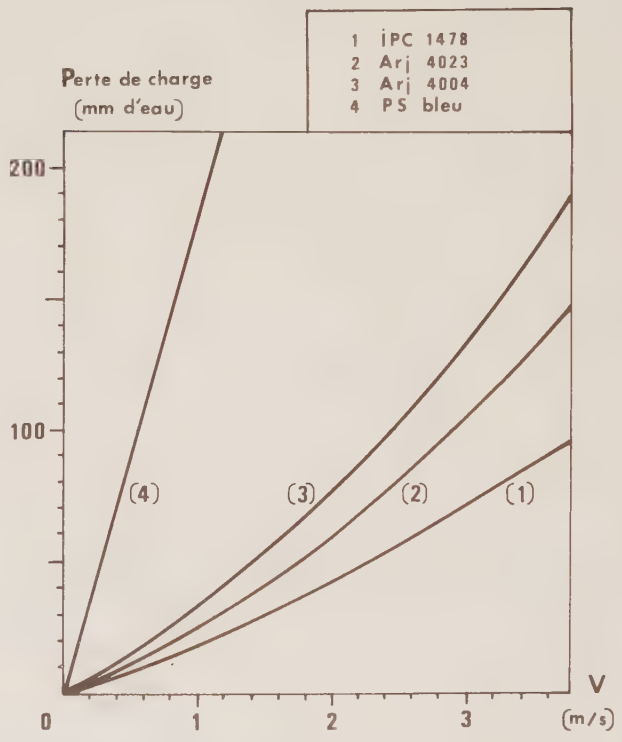

FIGURE I.D - *Pertes de charge de différents filtres en fonction de la vitesse de l'air.*

I. ETUDE DES FILTRES

J'ai étudié les caractéristiques (efficacité, perte de charge) de toute une gamme de filtres commerciaux, ce qui m'a amené à éliminer tous ceux présentant soit une efficacité trop faible, soit une perte de charge trop élevée. Les figures 1-D et 2-D présentent les diagrammes d'efficacité et de perte de charge, en fonction de la vitesse de l'air, pour les 4 filtres retenus (Arjomari 4004 et 4023, Poëlmann-Schneider bleu, IPC 1478). L'efficacité a été déterminée pour les descendants à vie courte du radon, fixés sur des aérosols de taille moyenne (0.3µ) représentatifs des aérosols atmosphériques. Les deux méthodes utilisées (filtre de référence en série ou en parallèle) ont donné des résultats semblables et en concordance avec les mesures citées dans la littérature (LOCKHART et al., 1964 ; MADELAINE, 1964). La perte de charge des

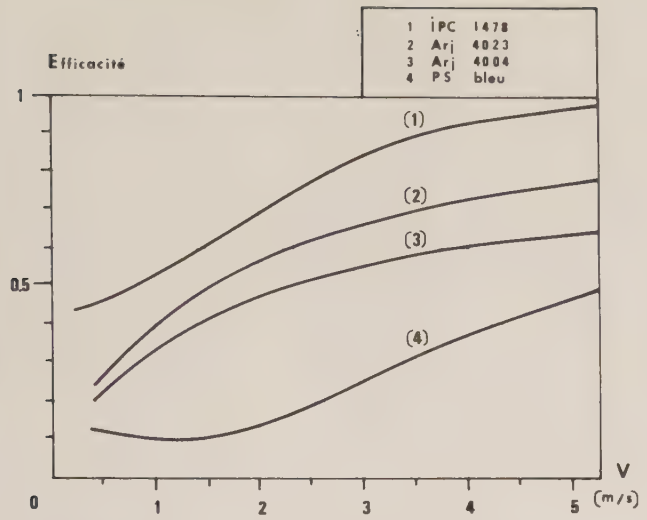

FIGURE 2.D - *Variation de l'efficacité k de différents filtres en fonction de la vitesse de l'air.*

filtres a été étudiée en caisson ; on constate qu'elle suit en général une loi parabolique en fonction de la vitesse et on vérifie qu'elle varie bien linéairement avec la masse spécifique de l'air. On a donc :

$$\Delta P = \frac{(av + bv^2)\cdot\rho}{\rho_o} \qquad (1)$$

avec :
ΔP : perte de charge
v : vitesse de passage de l'air
ρ : masse spécifique de l'air considéré
ρ_o : masse spécifique de l'air dans les conditions NTP
a, b : constantes fonction des filtres

II. ETUDE MATHEMATIQUE

On peut ramener pour les calculs le dispositif à un conduit cylindrique de section s, muni d'un filtre intérieur de surface S (figure 3-D).

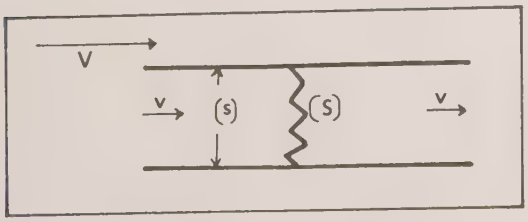

FIGURE 3.D - *Schéma de principe du dispositif.*

L'équation générale de l'écoulement de l'air s'écrit :

$$\frac{1}{2}\rho(V^2 - v^2) = \Delta P + \Sigma\xi \qquad (2)$$

avec :
V : vitesse de l'avion
v : vitesse de l'air à l'entrée de l'appareil
ΔP : perte de charge due au filtre
$\Sigma\xi$: pertes de charge graduelles.

On peut négliger la perte de charge introduite par la géométrie du capteur ; d'où l'expression de la vitesse v, dans laquelle n'apparait plus la masse spécifique de l'air :

$$v = \frac{-\alpha_r + \sqrt{\alpha^2 r^2 + (1+\beta r^2)\cdot V^2}}{1 + \beta r^2} \qquad (3)$$

avec : r = s/S (rapport des surfaces d'entrée et de filtre)
et en posant : $\alpha = a/\rho_o$ et $\beta = 2b/\rho_o$.

Le débit volumique Q = v.s est donc indépendant de l'altitude considérée. Le filtre ayant une efficacité k, fonction de la vitesse de passage de l'air à travers le filtre (v_f = r.v), la quantité d'aérosols effectivement collectée correspond à un "débit efficace" Q_e = Q.k . Pour une vitesse de l'avion V et une surface d'entrée s données, le débit efficace varie comme la fonction f(r) = k.v, qui passe en général par un maximum (figure 4-D). Le filtre Arjomari 4004 est le plus intéressant, et je l'ai utilisé dans les conditions optimales de rapport des surfaces : r = 0.05.

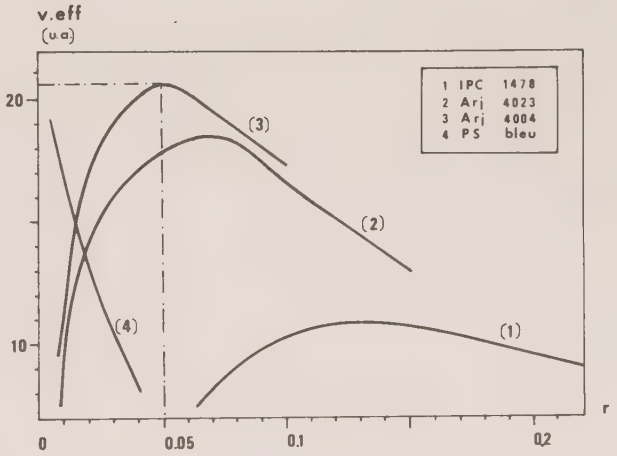

FIGURE 4.D - *Variations du facteur v.eff en fonction du rapport des surfaces r.*

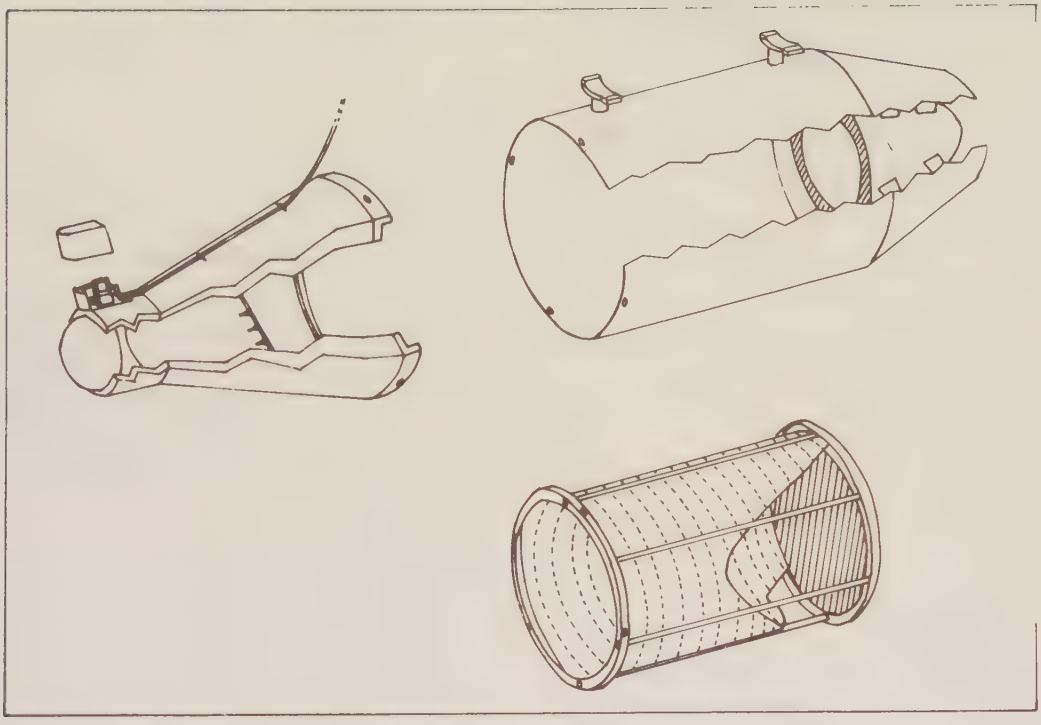

FIGURE 5.D - *Appareils de prélèvement MACRO. Vue en perspective cavalière.*

III. REALISATIONS EXPERIMENTALES

J'ai utilisé le plus souvent un avion de tourisme de type CESSNA Centurion (version 210 à turbo-système) permettant de monter jusqu'à 11 km d'altitude et d'atteindre des vitesses de 370 km/h. L'étude des contraintes développées sur l'avion par la résistance à l'air de dispositifs extérieurs (Dossier VERITAS) m'a conduit à fixer le diamètre d'entrée à 11 cm, d'où une surface de filtre S = 0.2 m^2.

Deux capteurs à fort débit (type M.A.C. R.O.) ont ainsi été réalisés. Chaque capteur (réalisé en duralumin) se présente comme un cylindre profilé, aux extrémités tronc-coniques (figure 5-D) ; le cone d'entrée est amovible, afin de permettre le changement du filtre, et il comporte un dispositif d'obturation (vanne papillon) entrainé par un petit moteur électrique commandé de la cabine. Le filtre est de géométrie cylindrique, et son étanchéité aux extrémités est assurée par de la paraffine coulée à chaud. Les capteurs sont accrochés, symétriquement de chaque côté de la carlingue, après les haubans de suspension des ailes par des ferrures en acier.

Les performances, en fonction de la vitesse de l'avion et de l'altitude de prélèvement, sont portées sur les figures 6-D et 7-D ; j'ai vérifié par des mesures expérimentales de vitesse à l'intérieur des appareils, en vol et en soufflerie, l'exactitude des calculs théoriques. Ces capteurs permettent ainsi de réaliser, au cours d'un vol de 2 heures, deux prélèvements de 1000 à 2000 kg d'air environ. (D'autres types de capteurs plus complexes (MACROJUDO) ont été par ailleurs réalisés, pour effectuer des prélèvements multiples d'aérosols stables ; bien que de performances inférieures, ils permettent également d'effectuer des collections d'aérosols radioactifs).

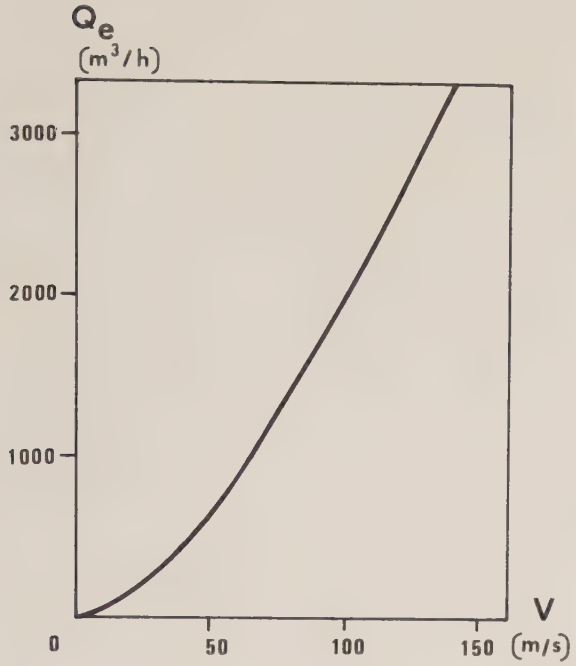

FIGURE 6.D - *Variation du débit volumique efficace en fonction de la vitesse de l'air V.*

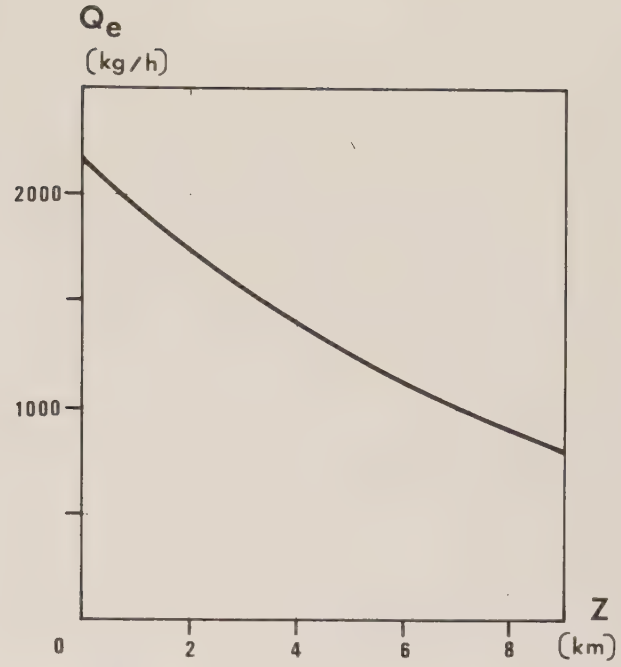

FIGURE 7.D - *Variation du débit massique efficace en fonction de l'altitude Z, pour une vitesse de l'avion de 90 m/s.*

☆ ☆
☆

BIBLIOGRAPHIE

ADROGUER, B. 1970
"Etude de la diffusion de matière dans la troposphère à l'aide de traceurs radioactifs naturels"
Thèse de doctorat de spécialité n° 900, Toulouse

AEGERTER, S., BHANDARI, N., RAMA & TAMHANE, A.S. 1966
" ^{7}Be and ^{32}P in ground level air "
Tellus 18 , 212

ALLKOFER, O.C., FOX, J.M. & SIMON, M. 1966
"Be-7 im radioaktiven fallout"
Atomkernenergie 11, 515

BA CUONG NGUYEN 1971
"Etude par les traceurs radioactifs des échanges entre les diverses zones de l'atmosphère au-dessus des continents et des océans"
Rapport CEA-R-3977

BANERJI, P. & CHATTERJE, S.D. 1966
"Radium content of rainwater"
Nature 211, 511

BENIOFF, P.A. 1956
"Cosmic-ray production rate and mean removal time of Be-7 from the atmosphere"
Phys. Rev. 104, 1122

BHANDARI, N., LAL, D. & RAMA 1966
"Stratospheric circulation studies based on natural and artificial radioactive tracer elements"
Tellus 18, 391

BHANDARI, N., LAL, D. & RAMA 1970
"Vertical structure of troposphere as revealed by radioactive tracer studies"
J. Geophys. Res. 75, 2974

BIROT, A. 1971
"Contribution à l'étude de la diffusion du radon et des aérosols dans la troposphère"
Thèse de doctorat n° 428, Toulouse

BLACK, S.C. 1961
"Low-level polonium and radiolead analysis"
Health Physics 7, 87

BLEICHRODT, J.F. & Van ABKOUDE, E.R. 1963-a
"Artificial Be-7 in the lower stratosphere"
J. Geophys. Res., 68, 4629

BLEICHRODT, J.F. & Van ABKOUDE, E.R. 1963-b
"On the deposition of cosmic-ray-produced Be-7"
J. Geophys. Res. 68, 5283

BLIFFORD, J.H., LOCKHART & ROSENSTOCK, H. 1952
"On the natural radioactivity in the air"
J. Geophys. Res. 57, 499

BOLIN, B. & RODHE, H. 1973
"A note on the concept of age distribution and transit time in natural reservoirs"
Tellus 25, 58

BRICARD, J. 1959
"Les formations nuageuses"
La Terre, Gallimard 315

BURTON W.M. & STEWART, N.G. 1960
"Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer"
Nature, 186, 584

BYERS, H.R. 1959
"General meteorology"
Mc Graw-Hill book company, Inc. New York, 51

CHAMBERLAIN, A. & CHADWICK,R. 1966
"Transport of iodine from atmosphere to ground"
Tellus, 18, 226

CHARLOT, G. 1963
"Analyse quantitative minérale"
Masson

CHI TRACH HOANG & SERVANT, J. 1969
"Détermination dans l'atmosphère des flux d'air à des altitudes inférieures à 35 km"
C.R. Acad. Sc. Paris, 268, 1049

CROZAT, G. 1969
"Contribution à l'étude de la répartition verticale des éléments radioactifs à vie longue dans l'atmosphère"
Thèse de spécialité. Faculté des Sciences de Toulouse

CRUIKSHANK, A.J., COWPER, G. & GRUMMITT, W.E. 1956
"Production of ^{7}Be in the atmosphere"
Canad. J. Chem. 34, 214

DAJLEVIC, R., DJURIC, D., FRANCOIS, H., PANOV, D., ROCHE DAJLEVIC, D. & SIGLI, P. 1963
"Détermination radiochimique du Polonium, du radium et de l'uranium dans les poussières polluant l'air des mines d'uranium"
Communication réunion franco-yougoslave, Herceg-Novi

DAMON, P.E. & KURODA, P.K. 1953
"On the artificial radioactivity of rainfall"
Nucleonics II, 59

DANIELSEN, E.F. 1968
"Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, Ozone and potential vorticity"
J. Atm. Sc., 25, 502

DAVIDSON, B., J.P. FRIEND & SEITZ, H. 1966
"Numerical models of diffusion and rainout of stratospheric materials"
Tellus, 18, 301

DOURY, A. & BOURGEON, P. 1966
"Les retombées radioactives en France après la seconde explosion nucléaire chinoise. Processus de transferts atmosphériques"
Rapport CEA-R 3020

DREVINSKY, P.J., WASSON, J.T., COUBLE, E.C. & DIMOND, N.A. 1964
"^{7}Be, ^{32}P, ^{33}P and ^{35}S : stratospheric concentrations and artificial production"
J. Geophys. Res. 69, 1457

FABIAN, P., LIBBY, W.F., & PALMER, C.E. 1968
"Stratospheric residence time and interhemispheric mixing of strontium-90 from fallout in rain"
J. Geophys. Res. 73, 3611

FEELY, H.W., DAVIDSON, B., FRIEND, J.P., LAGOMARSINO, R.J. & LEO, M.W. 1963
"Ninth progress report on project stardust"
US Dept. Def. Rep. DASA 1309

FEELY, H.W., FRIEND, J.P., KREY, P.W. & RUSSEL, B.A. 1965
"Flight data and results of radiochemical analysis of filter samples collected during 1961 and 1962"
HASL - 153, USAEC New York

FEELY, H.W., SEITZ, H., LAGOMARSINO, R.J. & BISCAYE, P.E. 1966
"Transport and fallout of stratospheric radioactive debris"
Tellus 18,316

FEELY, H.W. & SEITZ, H. 1970
"Use of Lead-210 as a tracer of transport processes in the stratosphere"
J. Geophys. Res. 75, 2885

FRY, L.M. & MENON, K.K. 1962
"Determination of the tropospheric residence time of Lead-210"
Science 137, 994

GOEL, P.S., NARASAPPAYA, N., PRABHAKARA, C., RAMA THOR & ZUTSHI, P.K. 1959
"Study of cosmic ray produced short-lived ^{32}P, ^{33}P, ^{7}Be and ^{35}S in tropical latitudes"
Tellus II, 91

GOPALAKRISHNAN, S.S. 1970
"Levels and variations of atmospheric radioactivity in surface air"
Proceedings of National Symposium on radiation physics, Trombay, Nov. 24-27, 521

GUSTAFSON, P.F., KERRIGAN, M.A. & BRAR, S.S.1961
"Comparison of Be-7 and Cs-137 radioactivity in ground-level air"
Nature 191, 454

HARTWIG, S. & SITTKUS, A. 1972
"Determination of atmospheric diffusion by measurements of the concentration of spallation products"
Z. Naturforsch. 27a, 1413

HASL I (1966 à 70)
"Euratom joint nuclear research centre, Ispra Etablishment, Quarterly report"
HASL, Quarterly report, USAEC New York

HASL 2 - (1967 à 1970)
"Project Airstream - Hight altitude balloon sampling program"
HASL, Quarterly report, USAEC New York

HASL 1972
"^{90}Sr concentrations in surface air (1965-1969)"
HASL-249 (Appendix) C-43

HAXEL, O. & SCHUMANN, G. 1955
"Selbstreiningung der atmosphäre"
Zeit. f. Phys. B., 142, 127

HENRY, W.M. & LOVERIDGE, B.A. 1961
"The determination of Lead-210 in Harwell effluent"
AERE - R 3795, UKAEA, Harwell

ISRAEL, H. 1951
"Compendium of meteorology"
Am. Meteor. Soc., Boston

JACOBI, W. & ANDRE, K. 1963
"The vertical distribution of radon-222, radon-220 and their decay products in the atmosphere"
J. Geophys. Res., 68, 3799

JAWOROWSKI, Z. 1967
"Stable and radioactive lead in environment and human body"
Polish Inst. Nucl. Res. Rev. Rep. 29, Nuclear En. Inf. Center, Warsaw

JAWOROWSKI, Z., BILKIEWICZ, J. & ZYLICZ, E. 1971
"^{226}Ra in contemporary and fossil snow"
Health Physics 20, 449

JOSHI, L.U. & MAHADEVAN, T.N. 1968
"Seasonal variations of radium D (Lead-210) in ground level air in India"
Health Physics 15, 67

JOSHI, L.U., RANGARAJAN, C. & GOPALAKRISHNAN, S. S. 1969
"Measurement of Lead-210 in surface air and precipitation"
Tellus 21, 107

JOSHI, L.U., RANGARAJAN, C. & GOPALAKRISHNAN, S. S. 1971
"Investigations on ^{210}Pb concentrations in various regions of India"
Health Physics 20, 665

JULIAN, A. 1970
"Etude des différents dispositifs de prélèvement en altitude des aérosols"
Thèse de spécialité. Faculté des Sciences de Toulouse

JUNGE C.E. 1963-b
"Air chemistry and radioactivity"
Academic Press Inc., New-York

KAROL, I. 1966
"Quantitative investigation of stratospheric mixing processes by means of long-lived radon decay products"
Tellus, 18, 337

KAROL, I. 1969
"Communication personnelle"
CACR Symp. Heidelberg

KAROL, I. 1970
"Calculation of planetary distribution of radon and its long-lived daughter concentrations in the troposphere and lower stratosphere"
J. Geophys. Res., 75, 3589

KLEINMAN, M. 1971
"The stratospheric inventory of Pu-238"
HASL-245, USAEC New-York

KOLB, W. 1970
"Jahreszeitliche Schwankungen der ^{7}Be, ^{54}Mn und spaltprodukt-konzentrationen der bodennahen luft"
Tellus 22, 443

KREY, P.W. 1967-a
"Sr 90, Ce 144 and Pb 210 in the upper stratosphere"
HASL-181, USAEC New York

KREY, P.W. 1967-b
"Strontium-90 concentrations and stratospheric transport"
J. Geophys. Res. 72, 2987

KREY, P.W., KLEINMAN, M. & KRAJEWSKI, B. 1969
"^{90}Sr stratospheric inventories 1967-68"
HASL-210, USAEC New York

KREY, P.W. 1969
"^{90}Sr and ^{210}Pb in the upper stratosphere"
HASL-207, USAEC New York

KREY, P.W. & KRAJEWSKI, B.T. 1972
"Updating stratospheric inventories to july 1971"
HASL-257, USAEC New York

LACOMBE, J.P. 1968
"Contribution à l'étude de la radioactivité des précipitations"
Thèse de spécialité, Faculté des Sciences de Toulouse

LAL, D., MALHOTRA, P.K. & PETERS, B. 1958
"On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology"
J. Atmos. Terr. Phys. 12, 306

LAL, D., RAMA & ZUTSHI, P.K. 1960
"Radioisotopes ^{32}P, ^{7}Be and ^{35}S in the atmosphere"
J. Geophys. Res. 65, 669

LAL, D., ARNOLD, J.R. & HONDA, M. 1960
"Cosmic-ray production rates of ^{7}Be in oxygen, and ^{32}P, ^{33}P, ^{35}S in argon at mountain altitudes"
Phys. Rev. 118, 1626

LAL, D. 1963
"On the investigations of geophysical processes using cosmic ray produced radioactivity"
Earth Science and Meteoritics, North-Holland Publishing Co, Amsterdam, Holland, p. 115

LAMBERT, G. 1963
"Sur l'aspect discontinu des transferts entre la stratosphère et la troposphère"
C.R. Acad. Sc. 256, 4064

LAMBERT, G. & NEZAMI, M. 1965
"Determination of the mean residence time in the troposphere by measurements of the ratio between the concentrations of Pb-210 and Po-210"
Nature, 206, 1343

LEHMANN, L. & SITTKUS, A. 1959
"Bestimmung der aerosol verweilzeiten aus dem RaD und RaF gehalt der atmosphärischen luft und des niederschlags"
Naturwiss, 46, 9

LEIPUNSKII, O.I., KONSTANTINOV, J.E., FEDOROV, G.A. & SCOTNIKOVA, O.G. 1970
"Mean residence time of radioactive aerosols in the upper layers of the atmosphere, based on fallout of high-altitude tracers"
J. Geophys. Res. 75, 3569

LEPAS, J. & ROCHE, G., 1965
"Cours de météorologie générale"
Ecole de la météorologie, Paris (Vol.1 et 2)

LOCKHART, L.B., PATTERSON, R.L. & ANDERSON, W.L. 1964
"Characteristics of air filter media used for monitoring air-borne radioactivity"
US N.R.L. Report 6054, Washington, D.C.

LUYANAS, V.Y., YASYULYONIS, R.Y., SHOPAUSKIENE, D.A. & STYRA, B.I. 1970
"Cosmogenic ^{22}Na, ^{7}Be, ^{32}P in atmospheric dynamics research"
J. Geophys. Res. 75, 3665

MACHTA, L. 1957
"The nature of radioactive fallout and its effect on man"
U.S. Government printing Office, Washington D.C., 141

MACHTA, L. 1966
"Some aspects of simulating large scale atmospheric mixing"
Tellus 18, 355

MACHTA, L., LIST, R.J., SMITH, M.E. & OESCHGER, H. 1970
"Use of natural radioactivities to estimate large-scale precipitation scavenging"
Precipitation scavenging (1970), AEC Symposium series 22, USAEC Div. Techn. Inf. Ext. CONF-700601, 465

MADELAINE, G. 1964
"Etude du pouvoir d'arrêt de différents filtres"
Rapport CEA R-2432

MARENCO, A., FONTAN, J., BLANC, D., LACOMBE, J. P. & HUGUET, R. 1967
"Variations à Toulouse des concentrations de ^{210}Pb, ^{210}Po et ^{7}Be dans l'air et les précipitations"
Geofisica e meteorologia 16, 31

MARENCO, A., FONTAN, J., BLANC, D., LACOMBE, J. P. & CROZAT, G. 1967
"Variations of the concentrations of Be-7, P-32, Sr-90, Pb-210 and Po-210 in air and rainfalls at Toulouse"
C.A.C.R. Symposium Lucerne

MARENCO, A., BLANC, D., FONTAN, J., LACOMBE, J. P. & CROZAT, G. 1968
"Dosage par analyse chimique des traces de Be-7, P-32, Sr-90, Pb-210 et Po-210 présentes dans l'air et les précipitations"
Chimie analytique 50, 133

MARENCO, A. & FONTAN, J. 1972-a
"Sources of Polonium-210 within troposphere"
Tellus 24, 38

MARENCO, A. & FONTAN, J. 1972-b
"Etude par simulation sur modèles numériques du temps de séjour des aérosols dans la troposphère"
Tellus 24,429

MARENCO, A. & FONTAN, J. 1973
Comments on "Lead-210, Bismuth-210 and Polonium-210 in the atmosphere. Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination" by S.E. POET, H.E. MOORE and E.A. MARTELL
J. Geophys. Res. 78 , 7076

MARENCO, A. & FONTAN, J. 1974-a
"Etude des variations des ^{7}Be, ^{32}P, ^{90}Sr, ^{210}Pb et ^{210}Po dans la troposphère"
Tellus 26 , 3 , –

MARENCO, A. & FONTAN, J. 1974-b
"Sur la production des ^{7}Be et ^{32}P dans l'air et l'utilisation de leur rapport d'activité"
Tellus 26 , 3 , –

MARTELL, E.A. & POET, S.E. 1969
"Excess atmospheric ^{210}Po - pollutant or natural constituent"
Trans. American Nuclear Society, Winter meeting Dec. 69, 484

MARTELL, E.A. 1970
"Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents vs. altitude"
Advances in chemistry series 93, 138

MARTELL, E.A. & POET, S.E. 1970
"Residence times of natural and pollutant aerosols in the troposphere"
Contrib. to the Univ. of Colorado workshops on research problems in air and water pollution. Aug. 3-15. Colorado Assoc. Univ. Press

MATTSON, R. 1970
"Seasonal variation of short-lived radon progeny ^{210}Pb and ^{210}Po, in ground level air in Finland"
J. Geophys. Res. 75, 1741

MEYER, P. & SIMPSON, J.A. 1955
"Changes in the low-energy particle cutoff and primary spectrum of cosmic radiation"
Phys. Rev. 99, 1517

MOORE, H.E., POET, S.E. & MARTELL, E.A. 1973
"^{222}Rn, ^{210}Pb, ^{210}Bi and ^{210}Po profiles and aerosols residence times versus altitude"
J. Geophys. Res. (in press)

MURAYAMA, N. 1964
"Meteorological feature of cosmic ray produced Be-7"
J. Meteorol. Soc. Japan, 42, 43

NEVISSI, A., BECK, J.N. & KURODA, P.K. 1973
"Long-lived radon daughters as atmospheric radioactive tracers"
J. Geophys. Res. (in press)

NEZAMI, M. 1966
"Contribution à l'étude du comportement géophysique du Pb-210 par application de la spectrométrie alpha"
Rapport CEA-R2886

NOSHKIN, V.E. 1969
"Fallout radionuclides and Be-7 in over-ocean aerosols"
Tellus 21, 414

OSBORNE, R.V. 1963
"Pu-239 and other nuclides in ground level air and human lungs during spring 1962"
Nature, 199, 143

PANOFSKY H. & BRIER G. 1968
"Some applications of statistics to meteorology"
University Park, Pennsylvania

PARKER, R.P. 1962
"Be-7 and fission products in surface air"
Nature 193, 967

PASCAL 1964
"Traité de chimie minérale"
Masson, 2049

PATTERSON, R.L. & LOCKHART, L.B. 1964
"Geographical distribution of Lead-210 (RaD) in ground-level air"
The natural radiation environment. The University of Chicago Press, Chicago, 383

PEIRSON, D.H. & KEANE, J.R. 1962
"Characteristics of early fallout from the russian nuclear explosions of 1961"
Nature, 196, 801

PEIRSON, D.H. 1963
"Be-7 in air and rain"
J. Geophys. Res. 68, 3831

PEIRSON, D.H. & CAMBRAY, R.S. 1965
"Fission products from the nuclear explosions of 1961 and 1962"
Nature, 205, 433

PEIRSON, D.H., CAMBRAY, R.S. & SPICER, C.S. 1966
"Lead-210 and Polonium-210 in the atmosphere"
Tellus 18, 427

PEIRSON, D.H. 1967
"Communication personnelle"
CACR Symp., Lucerne

PETERS, B. 1959
"Cosmic-ray produced radioactive isotopes as tracers for studying large-scale atmospheric circulation"
J. Atmos. Terr. Phys. 13, 351

POET, S.E., MOORE, H.E. & MARTELL, E.A. 1972
"Lead-210, Bismuth-210 and Polonium-210 in the atmosphere : Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination"
J. Geophys. Res. 77, 6515

QUENEY, P. 1959
"Les mouvements de l'atmosphère"
La terre, Gallimard, 243

RAMA, 1960
"Investigations of the radioisotopes ^{7}Be, ^{32}P and ^{35}S in rain water"
J. Geophys. Res. 65, 3773

RAMA & HONDA, M. 1961
"Natural radioactivity in the atmosphere"
J. Geophys. Res. 66, 3227

RAMA, 1963
"Atmospheric circulation from observations of natural radioactivity"
J. Geophys. Res. 68, 3861

RANGARAJAN, C. & GOPALAKRISHNAN, S.S. 1970
"Seasonal variation of Be-7 relative to Cs-137 in surface air . at tropical and sub-tropical latitudes"
Tellus 22, 115

RAPPORT CSNU 1958
"Rapport du Comité Scientifique des Nations Unies"
1958-17 (A/13.838), annexe B-58

REITER, R., SLADKOVIC, R., PÖTZL, K., CARNUTH, W. & KANTER, H.J. 1970
"Measurement of airborne radioactivity and its meteorological application"
Annual report (april 1969-march 1970), USAEC, NYO-4061-2

ROCHESTER, G.D. 1962
"Cosmic-rays and meteorology"
Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 88, 369

ROEDEL, W. 1967
"Tracer studies of atmospheric exchange based on measurements of cosmic ray produced Na 22"
CACR Symp., Lucerne

RSON, C.G., LAGOMARSINO, R.J., BOGEN, D.C. P.W. 1962
uaterly report on high altitude balloon sampling program"
NYO-10464, HASL, USAEC, New York

SCHUMANN, G. & STOEPPLER, M. 1963
"Be-7 in the atmosphere"
J. Geophys. Res. 68, 3827

SEITZ, H., DAVIDSON, B., FRIEND, J.P. & FEELY, H. W. 1968
"Final report on project streak : numerical models of transport, diffusion and fallout of stratospheric radioactive material"
Report n° NYO-3654-4, USAEC, Washington D.C.

SERVANT, J. 1964
"Le radon et ses dérivés à vie courte dans la basse atmosphère"
Thèse de doctorat ès-sciences n° 5209, Paris

SIMPSON,J.A. 1951
"Neutrons produced in the atmosphere by the cosmic radiations"
Phys. Rev. 83, 1175

SOBERMAN, R.K. 1956
"High-altitude cosmic-ray neutron intensity variations"
Phys. Rev. 102, 1399

STALEY, D.O. 1960
"Evaluation of potential - vorticity changes near the tropopause and the related vertical motions, vertical advection of vorticity, and transfer of radioactive debris from stratosphere to troposphere"
J. Meteorol. 17, 591

STALEY, D.O. 1962
"On the mecanism of mass and radioactivity transport from stratosphere to troposphere"
J. Atm. Sc. 19, 450

STEBBINS, A.K. 1961
"Second special report on the hight altitude sampling program. US Dep. Rep."
DASA 539B, 127

STEWART N.G., CROOKS, R.N. & FISCHER, E.M. 1955
"The radiological dose to persons in the U.K. due to debris from nuclear test explosions"
Report for the M.R.P. Committee on the Medical aspects of nuclear radiation, A.E.R.A., Harwell

STOREBØ, P.B. 1965
"Aerosols behaviour traced by artificial and natural radioactivity"
Tellus, 18, 532

STYRA, B. 1960
"About the contamination and cleaning the atmosphere of radioactive admixtures"
Coll. Papers for the 19e Intern. Geograp. Congress. Acad. of Sc. of the Lithuan. SSR

TELEGADAS, K. 1968
"The seasonal stratospheric distribution of Cd-109, Pu-238 and Sr-90"
HASL-184, USAEC New York

THOMAS, C.W., YOUNG, J.A., WOGMAN, N.A. & PERKINS, R.W. 1970
"The measurement and behavior of airborne radionuclides since 1962"
Advances in chemistry series 93, 158

TUREKIAN, K.K., KHARKAR, D.P. & THOMPSON, J. 1973
"The fates of ^{210}Pb and ^{210}Po in ocean surfaces"
Symposium international sur les échanges océan/atmosphère de matière à l'état particulaire,4-10 octobre, Nice, France

VILENSKIY, V.D. 1970
"The influence of natural radioactive dust in determining the mean stay time of Lead-210 in the troposphere"
IZV, Atmosph. and Ocean. Phys. 6, 3, 307

VOLCHOK, H.L. & KLEINMAN, M.T. 1971
"Global ^{90}Sr fallout and precipitation"
HASL-245, USAEC New York

WALTON, A. & FRIED, R.E. 1962
"The deposition of Be-7 and P-32 in precipitation at north temperate latitudes"
J. Geophys. Res. 67, 5335

☆ ☆
☆

AUTORISATION DE SOUTENANCE ACCORDEE

Toulouse, le 21 Janvier I974

Le Président de l'Université Paul Sabatier

L. LARENG